Série A, ORSAY
N° d'ordre :
99

THÈSES

présentées à la

FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

CENTRE D'ORSAY

pour obtenir le grade de

DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

par

Élie GRADSZTAJN

1re *THÈSE*

Formation des isotopes de lithium, béryllium et bore par l'interaction de protons de moyenne énergie avec ^{12}C et ^{16}O. Application à la nucléogenèse des éléments légers

2e *THÈSE : Propositions données par la Faculté*

Soutenues le 30 Avril 1965 devant la Commission d'examen :

MM.	AUGER	*Président*
	TEILLAC	*Examinateurs*
	SCHATZMAN	
	BERNAS	

MASSON & Cie, ÉDITEURS
120, boulevard Saint-Germain
PARIS — 1965

UNIVERSITEITSBIBLIOTHEEK - LEIDEN -

Série A, Orsay
N° d'ordre :
99

THÈSES

présentées à la

FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

CENTRE D'ORSAY

pour obtenir le grade de

DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

par

Élie GRADSZTAJN

1re *THÈSE*

Formation des isotopes de lithium, béryllium et bore par l'interaction de protons de moyenne énergie avec ^{12}C et ^{16}O. Application à la nucléogenèse des éléments légers

2e *THÈSE : Propositions données par la Faculté*

Soutenues le 30 Avril 1965 devant la Commission d'examen :

MM.	AUGER	*Président*
	TEILLAC	*Examinateurs*
	SCHATZMAN	
	BERNAS	

MASSON & Cie, ÉDITEURS
120, boulevard Saint-Germain
PARIS — 1965

FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

Doyen ..... M. ZAMANSKY

PROFESSEURS

BRELOT	T	Analyse supérieure.
PRENANT	T	Anatomie et histologie comparées.
GRASSÉ	T	Évolution des êtres organisés.
PRÉVOST	T	Chimie organique.
WYART	T	Minéralogie et Cristallographie.
TEISSIER	T	Zoologie.
MANGENOT	T	Biologie végétale (Orsay)
AUGER	T	Physique quantique et Relativité.
MONNIER	T	Physiologie générale
PIVETEAU	T	Paléontologie.
ROCARD	T	Physique (E.N.S).
CARTAN	T	Mathématiques (E.N.S.)
LAFFITTE	T	Chimie générale
N...	T	Géométrie supérieure.
COULOMB	T	Physique du Globe.
M^lle^ COUSIN	T	Biol animale (S.P.C.N.).
CHRÉTIEN	T	Chimie minérale.
BOCQUET	T	Zoologie.
KASTLER	T	Physique (E.N.S.).
EPHRUSSI	T	Génétique.
RIVIÈRE	T	Géologie (S.P.C.N.) et Sédim.
GAUTHERET	T	Biologie végétale (P.C.B.).
R. LUCAS	T	Recherches physiques.
A. THOMAS	T	Biologie cellulaire.
ARNULF	T	Optique appliquée.
MORAND	T	Physique Enseignement.
SOLEILLET	T	Physique (P.C.B.).
FORTIER	T	Mécanique expérim. des fluides.
DRACH	T	Zoologie.
QUENEY	T	Météorologie et dynamique atmosphérique
GALLIEN	T	Embryologie.
EICHHORN	T	Botanique.
DE CUGNAC	T	Biologie végétale (S.P.C.N.).
M^lle^ CAUCHOIS	T	Chimie physique.
THELLIER	T	Physique du Globe.
L'HÉRITIER	T	Biologie générale (Orsay).
GRIVET	T	Radioélectricité (Orsay)
PONCIN	T	Mécanique générale.
DUBREIL	T	Arithmétique et théorie des nombres.
CHAMPETIER	T	Chimie macromolécul.
CUVILLIER	T	Micropaléontologie.
JUNG	T	Géologie.
TRILLAT	T	Microscopie et diffraction électronique.
WIEMANN	T	Chimie org. et structurale.
JACQUINOT	T	Spectroscopie et physique céleste (Orsay).
VASSY	T	Physique de l'atmosphère.
DESTOUCHES	T	Théorie physique.
AMIEL	T	Chimie générale.
HOCART	T	Minéralogie et Cristallographie.
J.-P. MATHIEU ...	T	Physique (Optique).
COUTEAUX	T	Cytologie.
MAY	T	Zoologie.
CHOQUET	T	Théorie des fonct et topologie.
FELDMANN	T	Biologie végétale marine.
GUINIER	T	Physique des solides (Orsay).
JOST	T	Physiologie comparée.
FORTET	T	Calcul des probabilités et physique mathématique.
SCHWARTZ	T	Calcul différentiel et intégral.
CHOUARD	T	Physiologie végétale.
MALAVARD	T	Aviation (Techn. Aéronaut.).
NORMANT	T	Synthèse organique.
BÉNARD	T	Chimie minérale.
BUVAT	T	Botanique (E.N.S.).
DUGUÉ	T	Statistiques mathémat.
SOULAIRAC	T	Psychophysiologie.
ULRICH	T	Physiol. végétale appl.
MARÉCHAL	T	Optique théorique et appliquée.
KIRRMANN	T	Théories chimiques.
CHADEFAUD	T	Botanique.
M^lle^ LE BRETON ..	T	Physiologie de la nutrition.
LELONG	T	Application de l'analyse à la géométrie.
DEVILLERS	T	Anatomie et Histologie comparées.
EHRESMANN	T	Topologie algébrique.
FRANÇON	T	Physique (S.P.C.N.).
GLANGEAUD	T	Géographie physique et Géologie dynamique.
GODEMENT	T	Mathématiques (M.G.P.).
PISOT	T	Techniques mathématiques de la physique
QUELET	T	Chimie organique.
CAGNIARD	T	Géophysique appliquée.
LENNUIER	T	Physique (M.G.P.).
RIZET	T	Génétique (Orsay).
ROUTHIER	T	Géologie appliquée.
M^me^ TONNELAT ...	T	Physique théorique.
DIXMIER	T	Mathématiques (M.P.C.)
SOUCHAY	T	Chimie générale.
AIGRAIN	T	Électrotechnique générale.
BRUSSET	T	Chimie systématique.
M. LÉVY	T	Physique théorique des hautes énergies (Orsay).
M^me^ CHAIX	T	Chimie biologique.
M^me^ HUREL-PY ...		Biologie végétale (P.C.B).
PANNETIER	T	Chimie générale.
BRUN	T	Mécan. des fluides I.
LEDERER	T	Chimie biologique (Orsay).
M^me^ DUBREIL	T	Mathématiques (Agrég.).
M^me^ LELONG	T	Mathématiques (E.N.S)
BELLAIR	T	Géologie (S.P.C.N.).
COTTE	T	Physique électricité
J.-E. DUBOIS	T	Chimie organique.
LAMOTTE	T	Zoologie (E.N.S.).
A. MICHEL	T	Chimie minérale (Orsay)
OLMER	T	Énergétique générale.
ROUAULT	T	Électricité (Orsay).
GAUTHIER	T	Mécanique appliquée.
BARCHEWITZ	T	Chimie physique.
BROSSEL	T	Physique atomique.
BUSER	T	Physiologie comparée.
CAMUS	T	Physiologie végétale (B.M.P.V.).
CASTAING	T	Physique (Orsay).
CURIEN	T	Minéralogie et Cristallographie.
MOYSE	T	Physiologie végétale (Orsay).
M^me^ CHARNIAUX-COTTON	T	Évolution des êtres organisés.
POSSOMPES	T	Zoologie.
PULLMANN	T	Chimie théorique.
TEILLAC	T	Physique nucléaire et Radioactivité.
TONNELAT	T	Biologie physico-chimique (Orsay).
VILLE	T	Économétrie.
WILLEMART	T	Chimie (P.C.B.).
DODE	T	Chimie (Orsay).
FREYMANN	T	Recherches physiques
GUINOCHET	T	Biol. végét. (S.P.C.N.) (Orsay).
ROCH	T	Géologie.
SCHATZMAN	T	Astrophysique.
TERMIER	T	Géologie générale.
ZAMANSKY	T	Mathématiques générales.
G. LUCAS	T	Géologie.
ALLARD	T	Chimie physique.
BERTHELOT	T	Physique des particules fondamentales (Orsay).

PROFESSEURS *(suite)*

Bricard	T	Météorologie et physique de l'atmosphère (Orsay).
Mme Albe-Fessard	T	Psychophysiologie.
Friedel	T	Physique des solides (Orsay).
M. Julia		Études des mol. naturelles complexes.
Lender	T	Biol. animale (S.P.C.N.) (Orsay).
Magat	T	Écologie végétale (Orsay).
Mlle Quintin	T	Électrochimie.
Monod	T	Chimie du métabolisme
Benoit	T	Physiol. anim. (Orsay)
De Possel	T	Analyse numérique.
Charlot	T	Chimie analytique.
Lemée	T	Physicochimie des radioéléments.
Guérin	T	Chimie (M.P.C.) (Orsay).
M. Chatelet	T	Chimie (P.C.B.).
Jean	T	Physique nucléaire (Orsay).
Mattler	T	Physique (S.P.C.N.).
Bergerard	T	Zoologie (Orsay).
Bertein	T	Électronique (Orsay).
Bouissières	T	Radiochimie.
Mme Couture	T	Thermodynamique et mécanique physique.
Ellemberger	T	Géologie des grandes régions du globe (Orsay).
Franc	T	Biol. animale (P.C.B.).
Schnell		Botanique tropicale.
Stolkowski	T	Physiologie générale.
Acher	T	Chimie biol.
Baudoin	T	Biologie animale (P.C.B.).
Beaumont		Biologie animale (S.P.C.N.).
Blamont		Géophysique ionosphère.
Bourreau	T	Botanique.
D. Curie	T	Physique (M.G.P.).
Durand-Delga ...	T	Géologie.
Fréon	T	Chimie organique (Orsay).
Heller	T	Physiologie végétale.
Tortrat	T	Calcul des probabilités.
Cailleux	T	Géologie (S.P.C.N.).
Magnan		Physique (S.P.C.N.).
Daudel	T	Mécanique ondulatoire appliquée à la chimie théorique et à la physique nucléaire.
Rollet	T	Chimie (P.C.B.).
Mlle Josien	T	Chimie (S.P.C.N.).
Chevalley	T	Géométrie algébrique et théorie des groupes.
Arnoult	T	Électronique (Orsay)
Chapelle	T	Physique (Orsay).
Delange	T	Mathématiques (Orsay).
Deny	T	Mathématiques générales (Orsay).
Germain	T	Mécanique théorique des fluides.
Lacombe	T	Métallurgie des métaux nucléaires (Orsay).
Brochard	T	Physique P.C.B. (Orsay).
Cabannes	T	Mécanique générale.
Lesieur	T	Mathématiques I (Orsay).
Mazet	T	Mécanique générale (Orsay).
Caire		Géographie phys. et Géol. dynamique.
Comolet		Mécanique des fluides.
Corabœuf	T	Physiologie animale (Orsay).
Delloue	T	Physique de l'exosphère.
Gorenflot		Botanique II (Orsay)
Houillon		Biologie animale (P.C.B.)
J. Jullien		Chimie (P.C.B.).
Malgrange	T	Techn. math. de la Phys.
Olivier		Anthropologie.
Nozeran	T	Botanique II (Orsay).
Blanc-Lapierre ..	T	Phys. E.N.S. (Orsay).
Chevaugeon	T	Botanique (Orsay).
Kahane	T	Mathématiques (Orsay)
Samuel	T	Math. (E.N.S. féminine)
Kourganoff	T	Astronomie (Orsay).
Thiry	I	Mécanique céleste.
Abeles		Physique (S.P.C.N.).
Amat	T	Physique (P.C.B.).
Auboin	T	Géologie.
Mme Benoit-Gueutal	T	Physique nucl. et radioactivité.
Bougis		Biologie marine (Villefranche-sur-Mer).
Bruhat	T	Mathématiques (M.P.C.).
Brunn	T	Géologie historique (Orsay).
Chabbal	T	Physique (M.G.P.) (Orsay).
Deheuvels	T	Mathématique propé. (Orsay).
d'Espagnat	T	Physique théor. (Orsay).
Furon	T	Géologie (S.P.C.N.).
Mme Gans	T	Génétique.
Geneves	T	Biologie végétale (P.C.B.).
Guilbert		Physique (C.U.S., Orléans).
Hupe	T	Pétrographie.
Hollande	T	Biologie générale.
Lions	T	Analyse numérique.
Maitte	T	Chimie (P.C.B.).
Meyer		Physique propédeutique.
Nicolas		Géologie appliquée.
Panigel		Biologie générale.
Mlle Fourcroy ...		Biol. végétale (S.P.C.N.)
Mme Choquet-Bruhat	T	Mécanique analytique et mécanique céleste.
Mlle Veil	T	Physiologie générale.
Lwoff	T	Microbiologie.
Siestrunck	T	Mécanique physique et expérimentale.
Néron	T	Mathématiques (M.P.C.) (Orsay).
Mme Pecker-Wimel	T	Astrophysique.
Balkansky		Physique (M.P.C.).
Le Corre	T	Électricité.
Delcroix	T	Physique théorique (Orsay).
Gourdin		Phys. théor. des Hautes Énergies (Orsay).
Lehmann	T	Phys. exp. des Hautes Énergies (Orsay).
Nataf	T	Physique nucléaire et radioactivité (Orsay).
Echalier		Biologie animale (P.C.B.)
Barraud		Physiologie cellulaire.
Lioret		Physiologie végét. (Orsay).
Dars		Géologie struct. et géol. appliquée.
Camefort	T	Botanique (agrégation).
Vichniewsky	T	Mécanique industrielle.
Blaquière		Électronique (Orsay).
Arnous	T	Physique théorique.
Tatibouet		Chimie (C.S.U., Orléans).
Malliavin	T	Mathématique propé. (Orsay).
Gaudemar		Chimie propé.
Perez y Jorba ..	T	Phys. exp. des Hautes Énergies (Orsay).
David	T	Chimie (Agrég., Orsay).
Brousse	T	Mécanique théorique.
Rosch	T	Astronomie.
Guy	T	Physique expérimentale.
Lazard		Mathématiques (M.P.C.)
Pierre Morel		Physique (M.P.C.).
Arsac		Programmation.
Lefebvre		Chimie (M.P.C.).
Chapeville		Biochimie.
Benoit		Physique (C.P.E.M.).
Rio		Chimie (C.P.E.M.).
Jauzein		Géologie (E.N.S.).
G. Prévost		Biologie végétale (C.P.E.M.).
P. Favard		Biologie animale (C.P.E.M.).
Vilkas		Chimie (C.P.E.M.).
Mlle Ficini		Chimie (C.P.E.M.).
Lequeux		Astronomie.
Cohen Tannoudji..		Physique (M.P.C.).
Tavernier		Physique (C.P.E.M.).
Mme Roizen		Physique (C.P.E.M.).
M. Durand		Biologie animale (S.P.C.N.).
Ravier		Pétrographie.
Roseau	T	Mécanique théoriq. des fluides.
Roubine		Électronique.
Silber	T	Chimie (P.C.B.).
Uebersfeld	T	Électronique.
Yvon	T	Théories physiques.
Hervé	T	Mathématiques.
Jancovici		Physique atomique (Orsay).
Falk-Vairant		Physique nucléaire.
Fétizon		Chimie propédeutique.
Cerf		Mathématiques (Orsay).
Pascaud		Physiologie.
Mme Petit		Biologie animale (C.P.E.M.).
Brousse		Géologie (Orsay).
Cagnac		Physique agrégation (Orsay).
Leberre		Zoologie (Orsay).
Schaeffer		Microbiologie (Orsay).
De Gennes		Physique des solides (Orsay).
Riou		Physique nucléaire expé. (Orsay).
Clauser		Chimie biologique (Orsay).
Chevallier		Physiologie animale (Orsay).

Secrétaire Général ..... R. Poullain.

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41534917_0055

Une partie de nos résultats n'a pu être obtenue que grâce à la collaboration de l'équipe de spectrométrie de masse de notre laboratoire. Je remercie Mme M. Epherre, Mme F. Yiou et M. R. Klapisch pour leur concours efficace et amical. Que M. Bernas, Directeur de Recherches, trouve ici l'expression de ma gratitude pour l'aide et les conseils dont il m'a assisté pendant plusieurs années.

Ce travail a été réalisé au Laboratoire Joliot-Curie de la Faculté des Sciences d'Orsay. J'exprime ma reconnaissance à son Directeur M. le Professeur Teillac pour l'intérêt qu'il y a témoigné.

Certains aspects de mon travail ont pu être éclaircis par de fructueuses discussions avec Mme Benoist-Gueutal et M. Schatzman, Professeurs à la Faculté des Sciences de Paris et M. Reeves, Professeur à l'Université de Montréal. Je les remercie sincèrement.

Je n'oublierai pas de remercier M. Fergeau pour son importante contribution aux techniques de la spectrométrie de masse et M. Alorent, notre Sourcier, à qui je suis redevable des perfectionnements aussi importants que délicats de la source d'ions.

Laboratoire « Joliot-Curie » de Physique Nucléaire de la Faculté des Sciences de Paris
(Professeur J. Teillac)
B. P. 1, Orsay (S.-et-O.)

FORMATION DES ISOTOPES DE LITHIUM, BÉRYLLIUM ET BORE PAR L'INTERACTION DE PROTONS DE MOYENNE ÉNERGIE AVEC ^{12}C ET ^{16}O

APPLICATION A LA NUCLÉOGENÈSE DES ÉLÉMENTS LÉGERS

Par

Élie GRADSZTAJN

AVANT-PROPOS

Les réactions nucléaires de spallation ont fait l'objet de très nombreuses études depuis 1947 où Serber proposa le modèle en deux étapes qui porte son nom. Cependant ces études expérimentales et théoriques ont surtout concerné les noyaux moyens et lourds.

Nous nous sommes intéressés ici au seul cas des noyaux légers pour lesquels précisément les calculs habituels de sections efficaces ne sont pas applicables. Nous avons donc cherché une méthode de calcul qui puisse rendre compte des résultats expérimentaux.

Dans une première partie, nous décrirons la méthode expérimentale que nous avons utilisée pour déterminer les sections efficaces des isotopes stables du lithium par spectrométrie de masse, et nous montrerons comment les problèmes posés par l'analyse de quantités de l'ordre de 10^{-15} g à 10^{-14} g de lithium ont été résolus.

La deuxième partie est consacrée au calcul des sections efficaces de la réaction $^{12}C + p$ à 156 MeV. Notre méthode, tout en suivant, avec quelques modifications, le procédé généralement employé pour la phase d'interaction directe, s'en distingue essentiellement pour la deuxième étape qui concerne la désintégration des noyaux excités. En effet, le processus d'évaporation lente n'étant pas concevable pour les noyaux très légers et très excités, nous avons utilisé un modèle proposé par Fermi où l'émission des particules est simultanée.

Enfin, les résultats de nos mesures et de nos calculs constituent un ensemble de données nouvelles auquel peuvent être comparées les prévisions des modèles théoriques proposés en astrophysique pour rendre compte de la formation des éléments légers des planètes du système solaire. A la suite de cette comparaison, nous avons été amenés à proposer un schéma différent de celui qui est actuellement admis.

PREMIÈRE PARTIE

TECHNIQUE ET RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

CHAPITRE PREMIER

DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

A. — Introduction

La partie expérimentale de ce travail concerne la production de ^{6}Li, ^{7}Li et ^{7}Be dans des noyaux légers (^{12}C et ^{16}O) et constitue le point de départ d'un ensemble d'expériences actuellement étendues à des noyaux plus lourds (K.1).

Au cours des chapitres suivants qui traitent de la spallation et de la nucléosynthèse apparaîtra l'intérêt d'une telle étude, située dans une zone où les isotopes radioactifs de période convenable sont relativement rares. Nous avons donc utilisé pour l'étude des isotopes stables la spectrométrie de masse, seule technique offrant des possibilités pour ce genre d'investigation.

A cette fin, nous avons amélioré, d'une part la sensibilité de la source d'ions et d'autre part la technique de manipulation de faibles traces de l'ordre de 10^{-14} g de lithium.

Pour situer le présent travail, nous reproduisons sur la figure 1 le diagramme présenté en 1962 par Hintenberger (H.1) qui compare la sensibilité de détection des méthodes de comptage des éléments radioactifs et de spectrométrie de masse. Nous avons placé sur ce diagramme un point qui correspond à 5.10^{6} atomes (5.10^{-17} g), quantité minimum de lithium avec laquelle nous avons pu faire des mesures. On voit que ce point se place à l'extrême limite de détection actuelle. Il faut remarquer que la limite indiquée sur la figure 1 correspond aux expériences statiques de Reynolds (R.1) où 5.10^{5} atomes de xénon étaient enfermés dans un tube de spectromètre isolé, permettant une utilisation extrêmement efficace de l'échantillon gazeux. C'est une technique qui est maintenant très employée pour l'analyse de faibles traces de gaz rares notamment dans les météorites mais évidemment inapplicable aux solides dont les ions, neutralisés au collecteur, ne reviennent pas à la source pour être ionisés à nouveau.

A titre de comparaison avec nos résultats, nous donnons dans le tableau I ci-dessous les quantités d'éléments solides analysées par divers auteurs au cours d'études de réactions nucléaires.

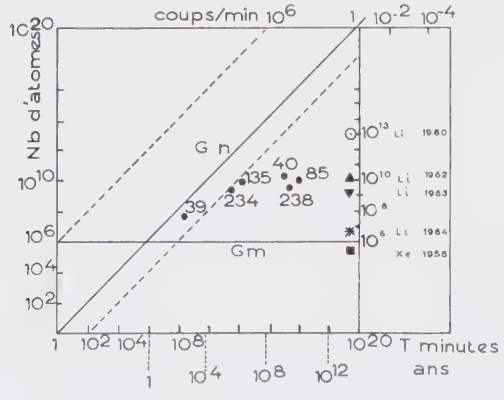


FIG. 1. — *Graphique extrait de* (H.1) *auquel sont ajoutés les éléments stables* Li *et* Xe. G_n *et* G_m *représentent respectivement les limites de détection par radioactivité et par spectrométrie de masse. Les nombres* 39, 40, 85, 135, 234 *et* 238 *correspondent aux noyaux* ^{39}Ar, ^{40}K, ^{85}Rb, ^{135}Cs, ^{234}U *et* ^{238}U.

TABLEAU I

Nature des réactions	Elément	Nombre d'atomes par analyse
Fission 1955 (P.1)	Rb, Cs, Rb et Terres rares	10^{15}
Fission 1957 (G.1)	Cs	10^{8} à 10^{9}
Spallation 1960 (G.2)	Li	10^{13}
Spallation 1962 (G.3)	Li	10^{10} à 10^{11}
Spallation 1962 (R.2)	Yb	10^{13}
Fission 1963 (M.1)	Terres rares	10^{10} à 10^{11}
Fission 1963 (F.1)	Cs	10^{8} à 10^{9}
Spallation 1963 (G.4)	Li	10^{9}
Spallation 1964 (N.1)	Cs	10^{8} à 10^{9}
Ce travail 1964	Li	10^{6} a 10^{8}

B. — Le spectromètre de masse

Le spectromètre de masse utilisé pour nos mesures a été construit au Laboratoire d'Orsay. Il est du type « Nier » classique entièrement métallique et possède les caractéristiques suivantes :

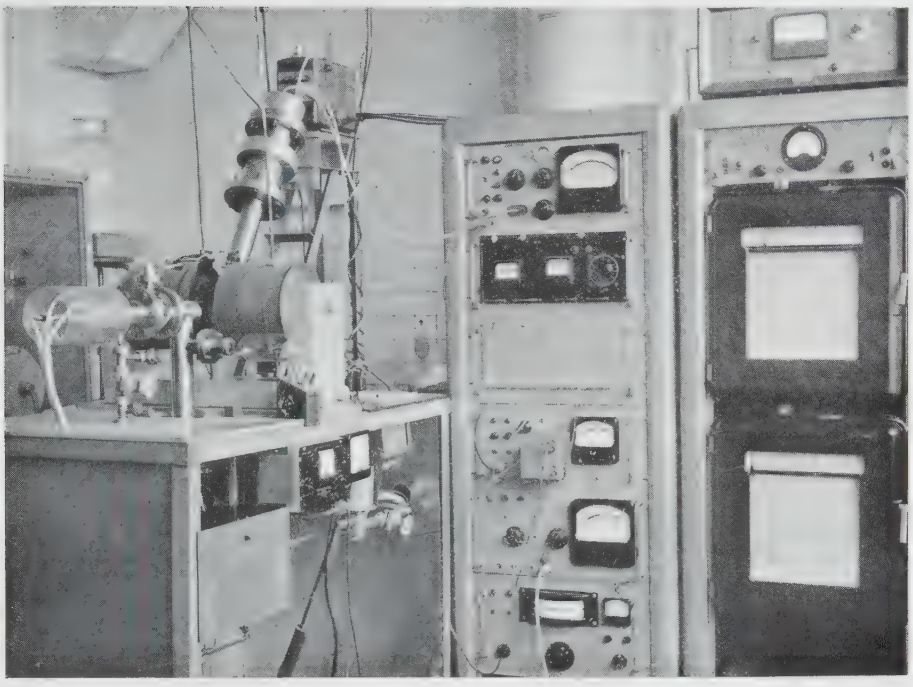


FIG. 2. — *Spectromètre de masse construit au laboratoire d'Orsay.*

— secteur magnétique homogène : 60°,

— rayon de courbure : 15 cm,

— mesure du courant (10^{-17} à 10^{-16} A) par multiplicateur d'électron (*) et amplificateur à condensateur vibrant (**).

La figure 2 donne une vue d'ensemble de l'appareil. Les seuls points particuliers à mentionner sont :

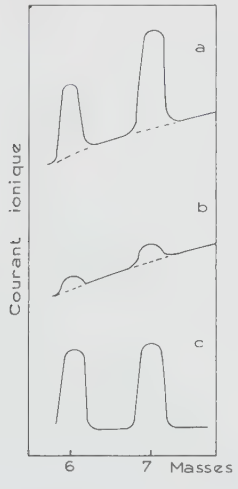


FIG. 3. — *Action d'un champ électrique repousseur* (b). *Effet des diaphragmes disposés à l'intérieur du tube du spectromètre de masse* (c).

1° La source d'ions qui fait l'objet d'une étude détaillée.

2° Le soin apporté à l'élimination des particules neutres et ionisées qui parviennent au détecteur en même temps que le faisceau d'ions à mesurer. En effet, la source émet outre les ions Li^+ qui nous intéressent un nombre beaucoup plus grand d'ions K^+, Na^+, etc. Ces derniers dont la trajectoire a un rayon de courbure plus grand que celui des ions Li^+ perdent leur charge par choc sur les parois du tube, et certains conservent assez d'énergie pour arracher des électrons à la première dynode du multiplicateur.

La figure 3 *a* montre qu'on observe dans ces conditions un fond continu superposé aux pics du lithium. Pour vérifier que ce sont bien des particules neutres qui sont à l'origine de ce fond continu, on applique à l'entrée du détecteur une différence de potentiel qui ralentit et repousse les ions et l'allure du nouveau spectre obtenu est indiquée en *b*. Afin d'éliminer ces particules indésirables, une série de chicanes et de diaphragmes a été disposée à l'intérieur du tube. Les spectres ont alors l'aspect présenté en *c*.

C. — La source d'ions

C'est essentiellement en développant les possibilités de la source d'ions positifs à ionisation superficielle que nous sommes parvenus à analyser des microtraces

(*) Dynodes en Cuivre-Beryllium non activé construit au Laboratoire d'Orsay.

(**) Cary modèle n° 31.

de lithium. Nous nous étendrons donc un peu plus sur cette partie de l'appareil.

Parmi toutes les sources d'ions utilisées en spectrométrie de masse, la source à ionisation superficielle est celle qui permet d'analyser les plus petites quantités d'éléments solides. Son inconvénient est d'être très sélective, mais cela peut inversement représenter un grand avantage, comme c'est le cas pour l'analyse isotopique du lithium produit lors de réactions nucléaires. En effet, en même temps que ^{6}Li et ^{7}Li, celles-ci produisent du ^{7}Be et l'on peut déterminer le rapport ^{7}Li/^{6}Li sans séparer chimiquement ^{7}Be grâce à l'impossibilité d'ioniser le béryllium avec ce type de source. Les rendements d'ionisation sur le tungstène à une température de 2 000° K sont en effet les suivants : Li : $3{,}8.10^{-3}$, Be : 1.10^{-13}.

Cette source repose sur le phénomène longtemps appelé émission thermo-ionique. Ce terme définit en réalité deux processus distincts : l'émission d'ions positifs par des sels chauffés, et l'ionisation superficielle proprement dite, qui est l'émission d'un ion lors de la mise en contact d'un atome avec une surface métallique chauffée. Les deux processus peuvent se produire simultanément et donner naissance à un courant ionique i, fonction de la température absolue T suivant la loi de Richardson (R.3),

$$i = CT^2 \exp(b/T)$$

où C et b sont constantes. Ce cas se produit lorsqu'un sel est déposé sur un filament métallique chauffé. Les ions sont alors produits en partie par la rupture des liaisons moléculaires, et en partie par le contact du filament. Par contre on obtient un effet pur d'ionisation superficielle en projetant une vapeur ou un jet atomique sur une surface métallique propre portée à une température convenable comme l'ont fait par exemple Dobretzov (D.1) et Werning (W.1).

La loi d'équilibre entre les atomes ionisés et les atomes neutres est alors représentée par la formule de Saha-Langmuir :

$$n^+/n^0 = A \exp[(W - \Phi)/kT] \qquad (1)$$

où n^+ : nombre d'ions produits,
n^0 : nombre d'atomes neutres évaporés,
A : facteur statistique égal à 0,5 dans le cas des alcalins,
W : travail d'extraction des électrons du métal,
$\Phi = e\varphi$, φ étant le potentiel d'ionisation de l'élément étudié et e la valeur absolue de la charge électronique.

Dans le cas des ions négatifs, l'émission est régie par une formule analogue :

$$n^-/n^0 = A \exp[(E - W)/kT]$$

où E est l'affinité électronique de l'atome à ioniser.

En ce qui concerne les alcalins, dont le potentiel d'ionisation est faible, la source que nous décrivons est sans conteste la plus efficace à l'heure actuelle.

Le tableau II fournit une comparaison des diverses sources pour éléments solides en fonction du nombre minimum d'atomes nécessaires pour effectuer une analyse isotopique.

Par ailleurs, l'énergie initiale des ions émis par la source à ionisation superficielle est comprise entre 0,1 et 0,2 eV ce qui permet d'utiliser pour l'analyse un dispositif à simple déviation magnétique.

TABLEAU II

Nombre minimum d'atomes nécessaires par analyse.

Source à ionisation superficielle (*a*)	Source à étincelle (H.2)	Source à four et à bombardement électronique (B.1)	Source à bombardement ionique (C.1)
10^6 à 10^8 pour Li	10^{13}	10^{17}	10^{12} à 10^{13} pour Li

(*a*) Ce travail.

La formule de Saha-Langmuir date de 1925. Depuis lors, de très nombreux auteurs ont étudié expérimentalement l'émission d'ions positifs et ont observé des écarts par rapport à cette loi établie théoriquement à partir de considérations thermodynamiques par Langmuir (L.1) ou statistique par Dobretzov (D.1).

Les études sur l'émission ionique superficielle ont été compliquées pendant un certain temps du fait que les expérimentateurs ne tenaient pas compte des impuretés contenues à l'intérieur des filaments. Werning (W.1) a montré que ces derniers contiennent souvent de l'oxygène et du fluor, et il explique les désaccords entre l'expérience et la théorie par l'intervention de réactions chimiques entre l'élément à ioniser et les impuretés. Ainsi le baryum forme le composé BaF dont une partie se dissocie ensuite et

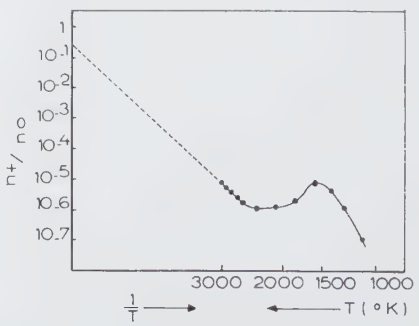


FIG. 4. — *Extrait de* (W.2).
Ionisation de Ag *sur le tungstène.*

contribue à la production d'ions Ba^+. Pour les températures élevées au-dessus desquelles les composés ne se forment plus, Werning obtient un très bon accord avec l'expression (1). C'est d'ailleurs une conclusion généralement admise : les écarts sont toujours observés pour les basses températures, et se traduisent essentiellement par un ou plusieurs pics qui se superposent à la droite représentant, en coordonnées semi-logarithmiques, la formule de Saha-Langmuir (fig. 4).

D'après Weiershausen (W.2) cette déformation de la droite, dans le cas de l'ionisation de Ag et Cu sur le tungstène, est due à l'adsorption d'oxygène par le filament de tungstène. En effet, il est bien connu qu'une couche, même monomoléculaire, d'oxygène augmente le travail d'extraction du tungstène, et par conséquent la proportion d'ions positifs. Au-dessus de 1 800° C, W_2O_5 se décompose et la loi linéaire s'applique à nouveau.

En fait, dans la plus grande partie des études concernant l'ionisation superficielle, les auteurs considèrent que la validité de la loi de Saha-Langmuir est établie et ils recherchent comment leurs conditions expérimentales la modifient. Il est possible ainsi, d'étudier l'adsorption de divers éléments, ou de déterminer certaines caractéristiques des surfaces, telles que l'état cristallin et le travail d'extraction des électrons (K.2, R.4, Z.1).

A partir du principe de l'ionisation par effet de surface, différentes sources d'ions pour spectromètre de masse ont été réalisées, depuis le type à un seul filament jusqu'à celui à trois filaments suggéré par Inghram et Chupka (I.1), où les fonctions de vaporisation et d'ionisation de l'échantillon sont effectuées par des filaments distincts.

On a coutume, depuis la première source à 3 filaments de ces auteurs de déposer l'échantillon soumis à l'analyse sur les 2 filaments latéraux et d'évaporer successivement la matière de l'un, puis, après épuisement, celle de l'autre, l'ionisation se produisant sur le filament central.

Afin d'améliorer encore le rendement nous avons procédé différemment, comme il a été fait dans l'une de nos études précédentes (T.1) : un seul filament, que nous prendrons ici pour simplifier comme étant le filament central mais qui peut être l'un quelconque des trois, est utilisé pour évaporer lentement l'échantillon. Les deux autres filaments, généralement en tungstène ou en rhénium, sont portés à une température de l'ordre de 2 000 à 2 500° K et ionisent la vapeur.

Le schéma de la figure 5 montre la disposition des filaments de notre source et la répartition des potentiels sur les électrodes.

Une photographie du support des filaments amovibles

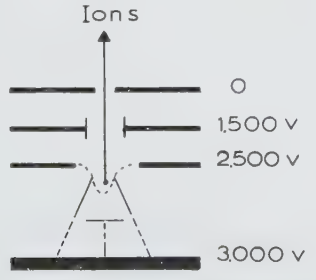


FIG. 5. — *Schéma de la source d'ions.*

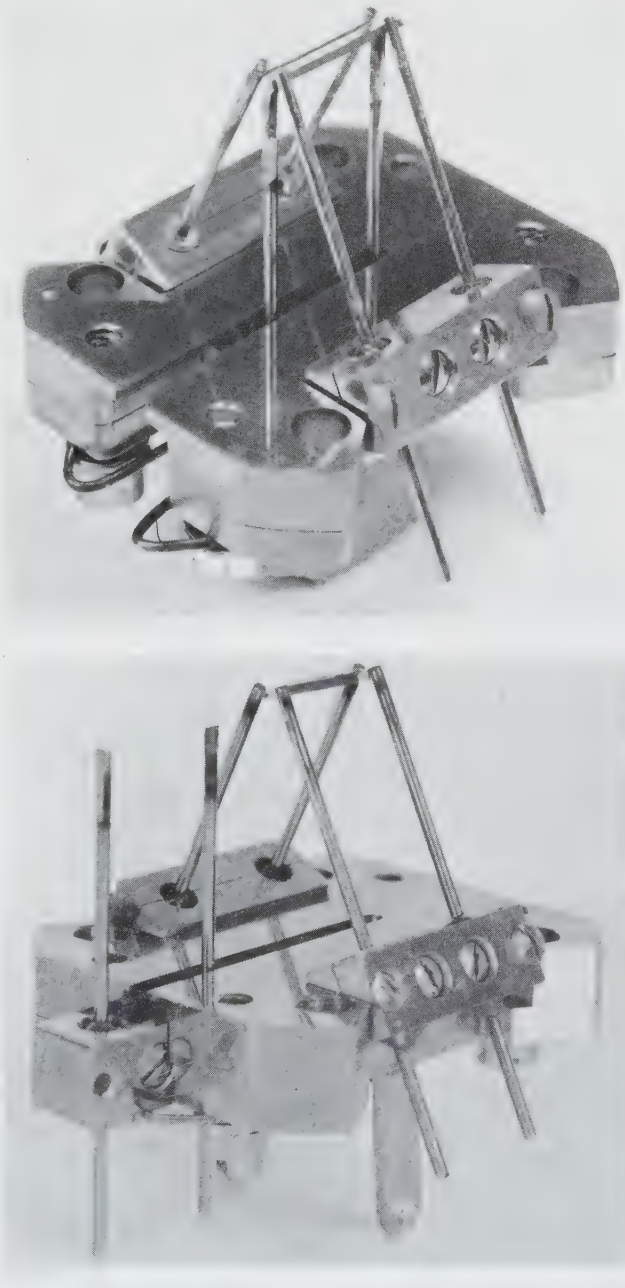


FIG. 6 et 7. — *Support des 3 filaments de la source d'ions.*

est donnée par la figure 6. Chaque filament est un élément indépendant comme on le voit sur la figure suivante 7. Cette particularité donne à la source une grande souplesse d'utilisation.

L'ensemble de la source est représenté sur la figure 8.

Le chauffage simultané des 2 filaments ionisants et l'inclinaison des 2 filaments latéraux sur le central favorisent la réflexion des atomes qui n'ont pas été ionisés au premier contact, la loi de réflexion pouvant être quelconque. On voit sur la figure 9 que la probabilité pour un atome émis de A d'atteindre la surface d'un filament est $\frac{2\theta}{\pi}$. Si N atomes sont évaporés, le nombre d'atomes qui pourront être adsorbés est $\frac{N2\theta}{\pi}$.

Désignons par β la probabilité d'ionisation par choc. Après le premier contact le nombre d'ions produits sera :

$$\frac{N\,2\theta}{\pi}\beta.$$

Ces derniers seront extraits par le champ électrique et il reste $\frac{N2\theta}{\pi}(1-\beta)$ atomes neutres dont $N\left(\frac{2\theta}{\pi}\right)^2(1-\beta)$ pourront, après réflexion, atteindre la surface d'un autre filament et ainsi de suite.

Après n réflexions, le nombre d'atomes neutres restant sera :

$$N\left(\frac{2\theta}{\pi}\right)^n(1-\beta)^n. \qquad (2)$$

Le nombre d'ions produits au $n^{\text{ième}}$ contact étant :

$$N\left(\frac{2\theta}{\pi}\right)^n(1-\beta)^{n-1}\beta$$

Si β est petit, ce qu'indique le tableau III dans le cas de l'ionisation du lithium sur le tungstène, l'expression (2) se réduit à $N\left(\frac{2\theta}{\pi}\right)^n$. Le nombre effectif des atomes ayant atteint la surface des filaments est donc :

$$N\sum_{m=1}^{n}\left(\frac{2\theta}{\pi}\right)^m = N\,\frac{1-\left(\frac{2\theta}{\pi}\right)^n}{1-\frac{2\theta}{\pi}}$$

Cette expression tend vers nN quand $\frac{2\theta}{\pi}$ tend vers 1. Or la disposition en triangle que nous avons adoptée non seulement donne à $\frac{2\theta}{\pi}$ une valeur qui peut être voisine de 1, mais de plus favorise les réflexions multiples (fig. 9). On peut donc expliquer ainsi la grande valeur du rendement global indiquée plus loin.

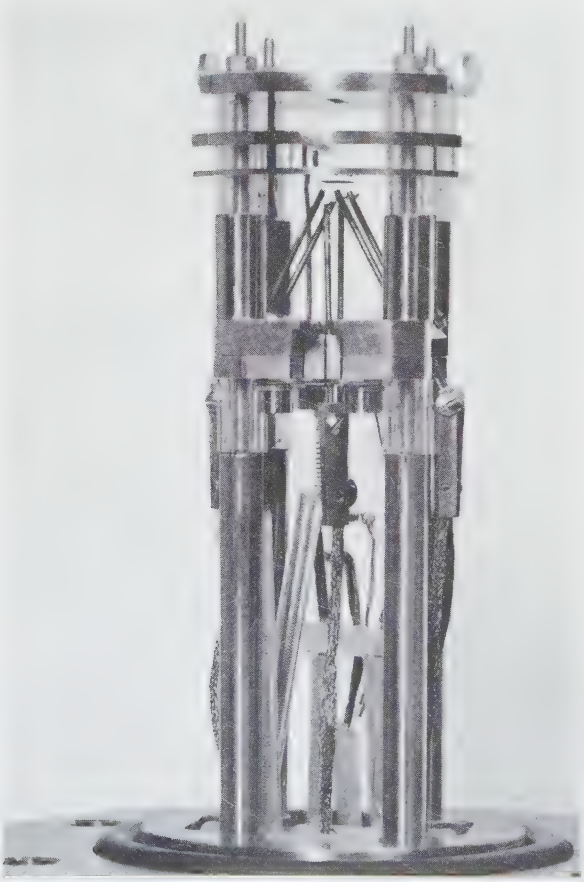


FIG. 8. — *Ensemble de la source d'ions.*

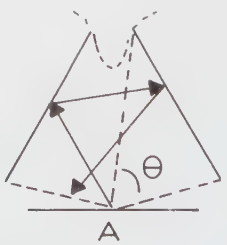


FIG. 9. — *Effet de l'inclinaison des filaments sur la réflexion des atomes neutres évaporés.*

En pratique on chauffe les 2 filaments ionisants en premier ; s'ils sont suffisamment proches du filament évaporateur et si l'élément est assez volatil, on peut observer un courant d'ions sans même chauffer le filament évaporateur. Si aucun courant n'apparaît il suffit de le chauffer très légèrement.

Performances. Efficacité globale du spectromètre de masse. — Pour déterminer cette grandeur nous avons déposé une quantité connue de lithium sur un filament et intégré le courant reçu au collecteur du spectromètre.

Les quantités déposées étant très petites, il faut supprimer ou tenir compte de la contamination due au

lithium naturel contenu dans l'eau des solutions. On utilise pour ces mesures du lithium 6 presque pur que l'on dose par dilution isotopique. Le lithium naturel de l'eau conduit à un mélange isotopique dont le rapport $^7Li/^6Li$ est d'environ 1.

La figure 10 montre un spectre de masse obtenu avec un dépôt d'environ 2.10^{-15} g de lithium, soit 10^8 atomes de chaque isotope. Dans ces conditions on obtient un courant ionique moyen pour chaque isotope d'environ 5.10^{-16} A pendant une trentaine de minutes. Le nombre d'ions collectés par isotope est donc de 5.10^5 ce qui correspond à un rendement global d'environ 5.10^{-3}, y compris le facteur de transmission du spectromètre dont nous ignorons la valeur exacte.

Si nous désignons par α le rapport $\frac{n^+}{n_0}$ donné par la formule de Saha Langmuir (1) on peut écrire, en choisissant convenablement les unités :

$$\alpha = \frac{1}{2}\, 10^{\frac{5\,040}{T}(W-\Phi)}.$$

La grandeur pratique intéressante et mesurable est le rendement d'ionisation :

$$\beta = \frac{n^+}{n^0 + n^+} = \frac{\alpha}{1+\alpha}.$$

Le tableau III donne les valeurs de β pour l'ionisation du lithium ($\Phi = 5{,}36$ V) sur le tungstène ($W = 4{,}52$ V).

TABLEAU III

T	1 000° K	1 500° K	2 000° K	2 500° K
β	3.10^{-5}	$7{,}5.10^{-4}$	$3{,}8.10^{-3}$	1.10^{-2}

Or la source fonctionne précisément à une température comprise entre 2 000° et 2 500° K, et si l'on compare la valeur du rendement global obtenu expérimentalement à celle de β, on en déduit que le nombre effectif d'atomes qui ont été en contact avec les filaments ionisants est voisin du nombre d'atomes évaporés. Comme le prisme n'est pas fermé, c'est qu'il s'est produit des réflexions à l'intérieur de celui-ci.

Il est intéressant de rappeler ici le rendement obtenu avec une source à un seul filament, construite également au laboratoire : une quantité de 10^{-14} g de lithium produit un courant ionique collecté de 5.10^{-17} A pendant 10 minutes, ce qui représente un rendement 300 fois plus faible que celui de la source actuelle.

Sensibilité. — Pour effectuer ces mesures de rendement nous avons utilisé des quantités de lithium relativement importantes (10^{-15} à 10^{-14} g). Il est difficile en effet de déposer sur un filament une quantité inférieure à 10^{-16} g puisque la concentration en lithium de l'eau tridistillée que nous utilisons pour les solutions est dans le meilleur des cas de 10^{-13} g/g, ce qui correspond à 10^{-16} g pour 1 mg d'eau.

Les quantités analysables sont cependant bien inférieures à 10^{-15} g. Il nous a été possible d'effectuer des mesures portant sur environ 5.10^{-17} g dans le cas d'un filament irradié par des protons (Y.1) et ne subissant ultérieurement aucune manipulation. Cette quantité a été évaluée en tenant compte des dimensions du filament, du flux de protons et de la section efficace de production de lithium.

Remarque. — Nous avons pu constater que si la source à trois filaments est plus efficace, la forme des raies (fig. 11) obtenues avec la source à un seul filament correspond à un faisceau mieux focalisé. L'élargissement du faisceau, visible sur la figure 10 provient de l'utilisation simultanée de deux filaments ionisants, qui donnent naissance à deux faisceaux plus ou moins séparés l'un de l'autre suivant la répartition des potentiels des électrodes. Une optique ionique appropriée permettrait de corriger ce défaut au cas où il s'avèrerait gênant, pour les éléments lourds, par exemple.

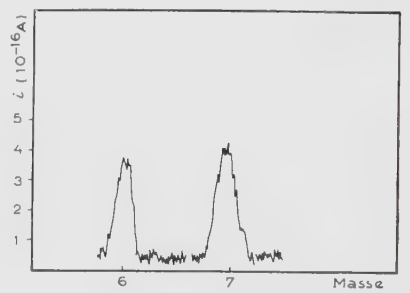


FIG. 10. — *Spectre de masse obtenu avec 10^{-15} g de lithium enrichi déposé sur le filament central de la source d'ions. La forme des raies correspond à un faisceau moins focalisé que celui de la figure 11.*

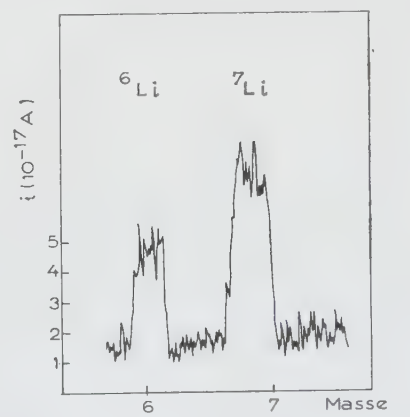


FIG. 11. — *Spectre de masse obtenu avec 10^{-14} g de lithium enrichi, à l'aide d'une source à un seul filament.*

Outre son rendement élevé, cette source est bien adaptée à la mesure des sections efficaces de réactions nucléaires. Sa conception, permettant de démonter aisément l'un quelconque des filaments qui reprend ensuite exactement sa place, non seulement facilite le dépôt d'un échantillon, mais a rendu possible par exemple la condensation sur un filament, des produits de réactions nucléaires distillés sous vide, ce que nous décrivons plus loin, et l'irradiation directe de filaments dans un accélérateur.

Un aspect pratique mais non de moindre importance réside dans la possibilité de laisser en place les filaments ionisants pendant la préparation du filament évaporateur et d'éviter ainsi leur contamination et par suite leur nettoyage à chaque expérience. Il est seulement nécessaire de vérifier rapidement qu'ils n'ont pas été pollués en surface avant la mesure. Cette particularité explique certainement la bonne reproductibilité des mesures.

Sur un plan différent, la structure largement ouverte de la source permet d'éliminer en grande partie les effets de mémoire, ce qui est essentiel quand il s'agit d'analyser des quantités aussi faibles.

Cette source est utilisée depuis 1961 pour les diverses expériences de spectrométrie de masse réalisées au laboratoire d'Orsay.

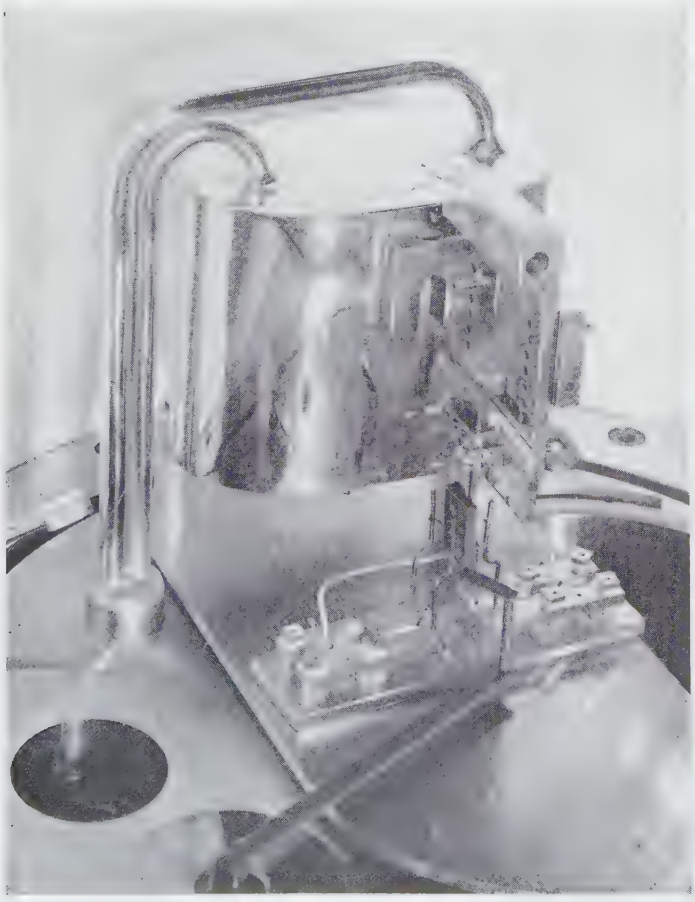
D. — Distillation sous vide

Les cibles que nous avons choisies pour les raisons exposées au chapitre IV sont ^{12}C et ^{16}O. Nous les avons irradiées sous forme de graphite et de glace, respectivement.

L'extraction du lithium de ces cibles (10^{-14} à 10^{-13} g) est extrêmement délicate et impose d'éviter toute contamination.

Nous verrons plus loin la technique expérimentale concernant ^{16}O. Dans le cas du carbone, afin d'éviter tout traitement chimique, nous avons utilisé une méthode de distillation sous vide analogue à celles employées par Nguyen Long Den (N.2) pour l'extraction du sodium de l'aluminium, et par Voshage et Hintenberger (V.1) pour l'étude du potassium dans des météorites ferreuses.

La figure 12 montre l'ensemble de l'installation.



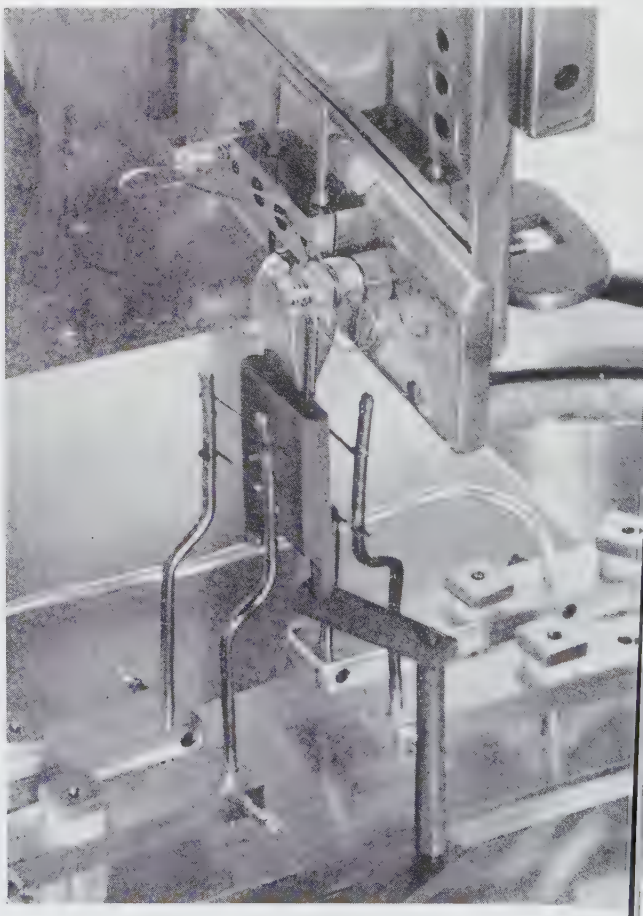


FIG. 12 et 13. — *Installation de distillation sous vide et détail du creuset de graphite.*

Les cibles irradiées, qui sont habituellement des feuilles dont l'épaisseur est comprise entre 0,1 et 1 mm, sont placées dans un four constitué d'une feuille de tantale repliée ou d'un petit bloc de graphite évidé (fig. 13).

Le chauffage du four, dont la surface rayonnante est de 3,7 cm² est obtenu en le bombardant par des électrons accélérés sous 2 kV, et la puissance nécessaire varie de 80 W pour 1 350° K à 400 W pour 2 050° K.

Ainsi que nous le montrerons plus loin la première de ces valeurs s'est avérée suffisante pour extraire en quelques minutes tout le lithium d'une cible de graphite de 1 mm d'épaisseur.

Les atomes ou les ions évaporés du four sont condensés sur le filament de la source d'ions. Celui-ci est placé à 1 mm au-dessus de l'ouverture du four (fig. 13) et se trouve en contact avec un petit bloc de cuivre argenté refroidi par de l'azote liquide.

La pression dans l'enceinte est comprise entre 10^{-6} et 10^{-5} mm de mercure.

On remarquera que la distribution des équipotentielles indiquée sur la figure 14 tend à attirer les ions^{+} sortant du four vers le filament froid et les électrons vers le four, tandis que les ions^{+} qui pourraient être émis par le filament chaud ne peuvent atteindre le filament froid.

Un système automatique comprenant une sonde à résistance interrompt le chauffage du four si la température du filament collecteur s'élève au-dessus de 0° C.

Après avoir recueilli le lithium en F (fig. 14) le réservoir d'azote liquide est vidé et la température du filament F ramenée à celle du milieu ambiant afin d'éviter toute condensation de vapeur d'eau lors de la remise à la pression atmosphérique.

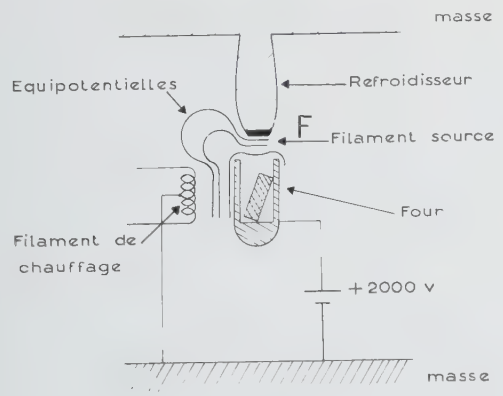


FIG. 14. — *Schéma de l'installation de distillation sous vide.*

La mesure du rendement de cette opération ne peut être effectuée sans grandes difficultés si l'on ne dispose pas d'au moins un isotope radioactif de l'élément étudié. Or dans le cas du lithium, la période la plus longue est celle de ^{8}Li et n'est que de 0,8 sec. Nous n'avons donc pas pu faire de mesure directe. Toutefois Nguyen Long Den a pu mesurer un rendement de transfert de 60 p. 100 pour le sodium (^{22,24}Na) extrait de l'aluminium ; cette valeur correspond à la quantité extraite sans l'aide supplémentaire d'un champ électrique.

Nettoyage du four. — L'élimination des alcalins et particulièrement du lithium lors de la mise en place d'un four neuf est relativement longue ; à pureté égale, elle dépend essentiellement des propriétés physiques du métal. Pour nos premières expériences nous avons tenté d'utiliser un métal pur tel que le tantale, mais il est apparu que celui-ci doit être chauffé pendant plusieurs jours à une température de 1 400° K pour éliminer le lithium. C'est ce qui nous a conduits à utiliser du graphite pour lequel environ 2 heures de chauffage sont suffisantes.

Nettoyage des cibles. - Les cibles de graphite sont également chauffées pendant plusieurs heures et leur pureté en lithium vérifiée avant l'irradiation.

Après celle-ci et avant la distillation du lithium produit, il est indispensable d'éliminer la contamination superficielle pouvant provenir des manipulations.

A cette fin nous faisons subir à la cible une électrolyse sous une tension de 1 000 V dans de l'eau très pure, avec la cible pour anode et une cathode en mercure, suivant une méthode qui nous a été suggérée par le Professeur Cabicar, de l'Université de Prague. Le passage de la région anodique à la région cathodique se fait par l'intermédiaire d'un tampon de laine de polythène. Le lithium se trouvant à la surface de la cible est ionisé et va se déposer sur le mercure avec lequel il s'amalgame.

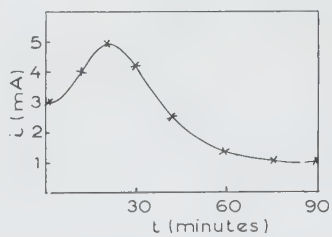


FIG. 15. — *Variation du courant électrolytique lors du nettoyage de la surface des cibles.*

La figure 15 représente la variation du courant i en fonction du temps, à température constante.

L'électrolyse est interrompue quand le courant i devient constant.

Cette méthode de nettoyage des surfaces nous a donné de très bons résultats pour le carbone, le niobium, le vanadium et le platine.

CHAPITRE II

MESURES ET RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

A. — Expériences sur ^{16}O

1. **Dosage de ^{7}Be dans ^{16}O.** — Dans notre recherche de procédés évitant la chimie comme méthode d'extraction des produits stables, nous avons été amenés, pour étudier l'oxygène, à irradier, en faisceau externe du synchrocyclotron, une cible constituée d'eau très pure. Le dosage de ^{7}Be a donc pu être extrêmement simplifié : après l'irradiation, il a suffi d'évaporer l'eau, tout le béryllium reste dans le porte-source et on compte les rayons γ avec un sélecteur 200 canaux d'Intertechnique muni d'un cristal de NaI.

L'eau est contenue dans un petit cylindre de verre de 3 cm de diamètre (dimension du faisceau de protons à la sortie du synchrocyclotron). L'épaisseur de la cible étant de 2 à 3 cm d'eau, on pouvait craindre que l'action des neutrons formés dans cette cible épaisse ne perturbe la mesure mais la valeur obtenue par Albouy *et al.* (A.1), par une méthode différente, a confirmé la nôtre.

Pour obtenir la valeur absolue de l'activité du ^{7}Be nous avons comparé notre échantillon à un étalon mesuré par le laboratoire de mesure des radioéléments du C. E. A. et dont l'activité était de :

$$18\ \mu c/g \pm 10\ \text{p. } 100.$$

Nous avons utilisé comme moniteur des feuilles d'aluminium de 0,02 mm d'épaisseur placées sur les faces avant et arrière de la cible, et adopté comme valeur de la section efficace de production de ^{24}Na à 156 MeV, celle de Yule et Turkevitch (Y.2) :

$$10 \pm 0{,}5\ \text{mb.}$$

En faisant la somme des erreurs dues à la mesure de l'épaisseur du moniteur, à l'incertitude sur la section efficace de ^{24}Na et au comptage des rayons γ on obtient une erreur totale proche de 20 p. 100.

Enfin, pour le calcul de la section efficace de formation de ^{7}Be, la proportion de désintégration de ce noyau par capture électronique aboutissant au niveau de 0,477 MeV de ^{7}Li a été prise égale à 12 p. 100 (S.1).

La valeur mesurée dans ces conditions est :

$$\sigma(p_{156\ \text{MeV}} + {}^{16}O \rightarrow {}^{7}Be) = 5 \pm 1\ \text{mb.}$$

2. **Dosage de ^{6}Li et ^{7}Li dans ^{16}O.** — La cible est constituée d'une eau très pure obtenue soit par tridistillation dans des appareils de quartz, soit par l'emploi d'une colonne de résine échangeuse d'ions (*). Cette eau contient néanmoins une petite quantité de lithium que l'on ne parvient pas à éliminer et variant entre 10^{-13} et 10^{-12} g/g.

Les premières mesures (G.2) ont été effectuées en irradiant de l'eau à l'état liquide contenue dans un récipient de quartz, et n'ont porté que sur ^{6}Li, le degré de pureté (10^{-11} g/g) n'étant pas suffisant pour mesurer la production de ^{7}Li. Nous avons ainsi mesuré la section efficace de production de ^{6}Li et obtenu :

$$\sigma(^{6}Li) = 12 \pm 4\ \text{mb.}$$

En utilisant la même technique, George (G.3) a trouvé 8 ± 3 mb.

Méthode de la glace. — Afin d'éviter que le lithium produit dans le quartz ne soit projeté dans l'eau étudiée, nous avons été conduits à irradier de la glace. Les mesures sont alors effectuées après l'élimination par fusion de la couche extérieure.

Les étapes successives en sont les suivantes :

1° Détermination de n_6 et n_7, nombres d'atomes ^{6}Li et ^{7}Li résiduels par gramme d'eau. On a évidemment $n_7/n_6 = 12{,}3$ (B.2). Cette mesure est effectuée à l'aide du spectromètre de masse décrit précédemment et par dilution isotopique, l'entraîneur étant du lithium 6.

2° Irradiation de la cible.

3° Mesure au spectromètre de masse du rapport :

$$R = (x_7 + n_7)/(x_6 + n_6)$$

où x_7 et x_6 sont les nombres d'atomes de ^{7}Li et ^{6}Li formés au cours de l'irradiation par gramme d'eau, n_7 et n_6 ayant été déterminés en 1.

Pour la clarté de l'exposé, nous décrirons ces trois étapes dans l'ordre inverse :

Phase 3.

Après avoir augmenté la sensibilité de la source d'ions jusqu'à pouvoir analyser 10^{-15} g de lithium, et obtenu de l'eau pure ne contenant plus qu'environ 10^{-12} g/g de lithium naturel, nous avons pu mesurer le rapport R sur plusieurs gouttes d'eau obtenues en fondant la glace par étapes successives.

La figure 16 représente le bloc de glace soutenu par un fil de platine pris dans la masse. La goutte à analyser est prélevée à l'aide d'une micropipette et

(*) Fournie par la firme Demino. Composition : 3/8 de résine cathionique (Amberlite IR 120) et 5/8 anionique (Amberlite IRA 410).

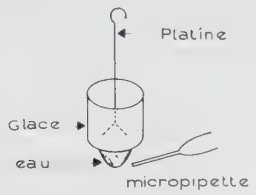


FIG. 16. — *Cible d'oxygène sous forme de glaçon.*

déposée sur le filament de la source d'ions. La glace est ensuite conservée dans une enceinte froide jusqu'au prélèvement de la goutte suivante.

Afin d'éviter la contamination, toutes ces opérations ont lieu dans une boite à gants sous atmosphère d'argon sec. En effet, la vapeur d'eau de l'air a pour effet de concentrer le lithium en suspension dans l'air, et d'autant plus que la présence de CO_2 transforme le lithium en carbonate très soluble.

Ces précautions prises, on peut mesurer sur un premier bloc de glace :

$$R = (x_7 + n_7)/(x_6 + n_6),$$

mais pour calculer x_7 et x_6 une deuxième relation de ce type est nécessaire. On l'obtient en irradiant une deuxième cible de glace dans des conditions différentes :

$$R' = (x'_7 + n'_7)/(x'_6 + n'_6)$$

où n'_7 et n'_6 peuvent ne pas être seulement dus au lithium naturel mais aussi à l'addition d'un mélange ^{7}Li et ^{6}Li connu en abondance et en quantité absolue.

Par ailleurs, on a :

$$\frac{x'_7}{x_7} - \frac{x'_6}{x_6} = K$$

où K est le rapport des flux de protons de chaque irradiation. On en déduit :

$$x_6 = \frac{KRn_6 + n'_7 - (R'n'_6 + Kn_7)}{K(R' - R)}$$

et :

$$x_7 = R(x_6 + n_6) - n_7.$$

L'activité du béryllium formé dans la glace permet une mesure très facile du rapport K. Afin d'éliminer les causes d'erreur dues à l'inhomogénéité de l'irradiation de la glace, pour chaque goutte soumise à l'analyse au spectromètre de masse, on prélève deux gouttes pour le comptage du ^{7}Be ; successivement : une goutte pour ^{7}Be, la suivante pour ^{6}Li et ^{7}Li, la troisième pour ^{7}Be. Les gouttes 1 et 3 sont pesées ensemble et leur activité spécifique mesurée.

Moniteur. — La mesure relative de l'activité de ^{7}Be des deux cubes de glace fournit la valeur de K, la mesure absolue de N(^{7}Be), nombre d'atomes de ^{7}Be formé par gramme d'eau, donne la valeur de la section efficace de formation de ^{6}Li et ^{7}Li. En effet, on a :

$$\frac{\sigma(^6\text{Li})}{\sigma(^7\text{Be})} = \frac{x_6}{N(^7\text{Be})} \quad \text{et} \quad \frac{\sigma(^7\text{Li})}{\sigma(^7\text{Be})} = \frac{x_7}{N(^7\text{Be})}$$

Cette méthode permet donc, en utilisant l'eau elle-même comme moniteur, de mesurer $\sigma(^6\text{Li})$ et $\sigma(^7\text{Li})$ dont les valeurs sont données dans le tableau V.

Phase 2. Irradiation :

Il y a peu à dire sur cette partie de l'expérience sinon que la cible, d'un poids d'environ 2 g, était placée à la sortie du synchrocyclotron et réfrigérée par un mélange de méthanol et d'anhydride carbonique.

Une irradiation de 3 ou 4 heures produit une quantité de lithium de l'ordre de 10^{-12} g/g.

Phase 1.

Le dosage précis de la quantité de lithium résiduel contenu dans l'eau à irradier a été effectué par la méthode de dilution isotopique que nous rappelons brièvement.

Méthode de dilution isotopique. — La méthode de dilution isotopique déjà décrite maintes fois par ailleurs (I.2) consiste essentiellement à observer la variation des abondances isotopiques dans un échantillon à doser, après y avoir ajouté un entraîneur isotopique dont on connaît la composition et le poids. En reprenant les notations de Hintenberger (H.3), supposons que nous ayons au total x atomes de l'échantillon à doser composé de n isotopes. On en a déterminé les abondances relatives a_i, telles que $\sum_1^n a_i = 1$; on a donc xa_i atomes de l'isotope i dans cet échantillon. Ajoutons maintenant y atomes de l'entraîneur composé lui aussi de n isotopes dont les abondances relatives sont b_i, avec $\Sigma b_i = 1$. Dans l'entraîneur, on a donc yb_i atomes de l'isotope i.

Dans le mélange échantillon + entraîneur, les abondances relatives sont $c_1 \ldots c_i \ldots c_k \ldots c_n$ et on peut écrire :

$$C_{ik} = \frac{c_i}{c_k} = (xa_i + yb_i)/(xa_k + yb_k).$$

On en tire :

$$x = y\,\frac{B_{ik} - C_{ik}\,b_k}{C_{ik} - A_{ik}\,a_k}$$

où :

$$A_{ik} = \frac{a_i}{a_k} \quad \text{et} \quad B_{ik} = \frac{b_i}{b_k}$$

y étant connu, x est donc déterminé par la mesure des rapports A_{ik}, B_{ik}, C_{ik} et b_k/a_k.

Si l'élément n'a que deux isotopes les relations précédentes peuvent s'écrire :

$$a_2 = \frac{1}{1 + A_{12}} \quad \text{et} \quad b_2 = \frac{1}{1 + B_{12}}$$

d'où :

$$x = y\,\frac{B_{12} - C_{12}}{C_{12} - A_{12}} \cdot \frac{1 - A_{12}}{1 + B_{12}}.$$

Application à la mesure de n_6 et n_7. — Avant d'utiliser la solution entraîneur E enrichie en ^{6}Li pour mesurer n_6 et n_7, il est indispensable de déterminer avec précision le nombre d'atomes de ^{6}Li et ^{7}Li par gramme de solution, soient E_6 et E_7.

On effectue pour cela une dilution isotopique où la solution E est maintenant considérée comme l'échantillon à doser.

On prend alors comme entraîneur une solution N de lithium naturel contenant N_6 et N_7 atomes de ^{6}Li et ^{7}Li par gramme.

La détermination de E_6 et E_7 se fait en 3 étapes :

1° Contrôle de la pureté de l'eau utilisée pour la solution N.

2° Préparation de la solution N.

3° Dilution isotopique E + N et mesure du rapport ^{7}Li/^{6}Li du mélange.

Reprenons le point 1 en détail :

La question se pose de savoir si l'on peut négliger la quantité de lithium résiduel contenu dans l'eau servant à faire les solutions étalons de lithium naturel.

Cette première étape est en somme une mesure par itération du lithium résiduel contenu dans l'eau devant servir à la solution N. En effet, on connaît avec une assez bonne approximation la concentration en lithium enrichi de la solution E : elle a été préparée en dissolvant environ 3 mg dans de l'eau dont la pureté était supposée suffisante. Cette solution contient alors environ 10^{-6} g/g de lithium dont le rapport mesuré au spectromètre de masse est $E_7/E_6 = 0{,}02$. Pour déterminer E_7 et E_6 avec précision, l'étape 2 consistera donc à dissoudre 10^{-3} g de lithium naturel dans 10^3 g d'eau, ce qui donnera à la solution N une concentration de 10^{-6} g/g de lithium naturel, et on obtiendra donc lors de l'étape 3 un mélange dont le rapport ^{7}Li/^{6}Li mesuré avec précision sera voisin de 1.

L'erreur relative $\frac{\Delta r}{r}$ due au lithium résiduel contenu dans l'eau de N sera inférieure à 10^{-3} si la concentration de ce dernier ne dépasse pas 10^{-9} g/g. En effet, les 10^3 g d'eau contiennent alors 10^{-6} g de lithium résiduel et comme N contiendra 10^{-3} g de lithium naturel ajouté, on aura :

$$\frac{\Delta r}{r} \quad \frac{10^{-6}}{10^{-3}} \quad 10^{-3}.$$

Pour s'assurer que cette limite est respectée on ajoute 10 mg de la solution E, c'est-à-dire 10^{-8} g de lithium enrichi, à 1 g de l'eau destinée à N : comme $E_7/E_6 = 0{,}02$, le rapport dans le mélange ne doit pas dépasser 0,03. Les mesures ultérieures montrent que la concentration de lithium résiduel dans l'eau est de l'ordre de 10^{-12} g/g. On voit donc que la limite de 10^{-9} g/g permise dépasse largement le cas réel et que l'incertitude due au lithium résiduel pour la mesure de E_6 et E_7 est négligeable.

Les valeurs de E_6 et E_7 étant ainsi déterminées on peut alors utiliser la solution E pour mesurer n_6 et n_7 et procéder à l'irradiation de la cible.

Résultats. — Le tableau IV donne un exemple de résultats obtenus pour deux irradiations de glace aboutissant à des valeurs de R assez différentes pour obtenir une bonne précision.

TABLEAU IV

Irradiation	R	n_7	n_6	x_7	x_6	N(^{7}Be)
n° 1	3,46	9,6	0,8	4,01	3,14	1,66
n° 2	2,60	9,8	2,1	4,18	3,27	1,73

Les nombres d'atomes sont exprimés en unités valant 10^{11}.

R a été corrigé pour tenir compte de la discrimination en masse de l'appareil qui sera considérée plus en détail à la fin de ce chapitre.

Les sections efficaces déduites du tableau IV en prenant $\sigma(_7\text{Be}) = 5 \pm 1$ mb sont :

$$\sigma(^6\text{Li}) = 9{,}5 \pm 2{,}5 \text{ mb},$$

et :

$$\sigma(^7\text{Li}) = 12{,}4 \pm 4{,}0 \text{ mb}.$$

Une série d'autres valeurs de σ, mesurées par plusieurs expériences, est donnée dans le tableau V.

TABLEAU V

Valeurs de $\sigma(^6\text{Li})$ et $r = \sigma(^7\text{Li})/\sigma(^6\text{Li})$ obtenues pour différentes expériences.

$\sigma(^6\text{Li})$ mb	12 ± 4	8,0 ± 2,5	10,5 ± 2,5	10,0 ± 2,5	8,9 ± 3	9,1 ± 3	10,3 ± 3	9,5 ± 2,5	11,5 ± 3
$r = \frac{\sigma(^7\text{Li})}{\sigma(^6\text{Li})}$		1,3 ± 0,3	1,4 ± 0,3		1,7 ± 0,5			1,3 ± 0,4	1,5 ± 0,4

En résumé, les valeurs moyennes obtenues et les incertitudes associées sont :

$$\sigma(^6\text{Li}) = 9{,}8 \pm 1{,}4 \text{ mb}.$$
$$r = 1{,}4 \pm 0{,}2.$$

B. — Expériences sur ^{12}C

Les mesures. — Comme dans ce qui précède, la réaction produisant ^{7}Be dans la cible elle-même est utilisée pour mesurer $\sigma(^{6}Li)$ et $\sigma(^{7}Li)$. La section efficace de cette réaction est connue dans un domaine d'énergie assez étendu (C.2) et nous n'avons pas eu à la mesurer.

Les cibles étaient constituées de plaquettes de graphite de $1 \times 0{,}5$ cm² de surface et 0,5 mm d'épaisseur. Les durées d'irradiation sont indiquées par le tableau VI.

Le lithium est extrait de la cible de graphite par la méthode de distillation décrite au chapitre premier, après nettoyage de la surface de la cible par électrolyse.

Avant l'irradiation, la cible est chauffée sous vide pendant quelques heures, et l'on vérifie que les traces de lithium naturel résiduelles sont négligeables devant la quantité de lithium qui sera produite par l'irradiation.

Aussitôt après la fin de celle-ci, qui est courte par rapport à la période de ^{7}Be, celui-ci n'a pas encore décru de façon mesurable pour donner ^{7}Li, et si l'on désigne par x_7 et x_6 le nombre d'atomes de ^{7}Li et ^{6}Li formés, on a :

$$R_0 = x_7/x_6.$$

Ce rapport peut être mesuré au spectromètre de masse puisque le béryllium n'est pas ionisé par la source d'ions, même s'il en a été condensé sur le filament.

Une deuxième mesure au temps t (de l'ordre de plusieurs fois la période de ^{7}Be) après l'irradiation, conduit à une deuxième relation :

$$\begin{aligned} R(t) &= \frac{x_7 + N_0(^{7}Be)\,(1 - e^{-\lambda t})}{x_6} \\ &= \frac{x_7}{x_6} + \frac{N_0(^{7}Be)\,(1 - e^{-\lambda t})}{x_6} \\ &= R_0 + \frac{\sigma(^{7}Be)}{\sigma(^{6}Li)}\,(1 - e^{-\lambda t}) \end{aligned}$$

où λ est la constante radioactive de ^{7}Be. Connaissant $\sigma(_{7}Be)$ on en déduit immédiatement $\sigma(^{6}Li)$ et $\sigma(^{7}Li)$.

En fait, on mesure les rapports à des temps t et t', et dans deux cibles distinctes. En effet, ne connaissant pas la fraction de ^{7}Be qui est distillée, par rapport au lithium, il n'est pas possible de procéder à deux distillations très espacées dans le temps sur une même cible : après la décroissance de ^{7}Be, la deuxième mesure serait faussée. Il est donc indispensable de laisser décroître ^{7}Be avant la distillation.

Le mode opératoire consiste donc à faire une distillation au temps t pour la cible C et mesurer le rapport $R(t)$, puis une deuxième distillation au temps t' pour la cible C′ qui donnera le rapport $R(t')$.

On a donc, $N_0(^{7}Be)$ et $N_0'(^{7}Be)$ désignant les nombres d'atomes de ^{7}Be formés dans les cibles C et C′ :

$$R(t) = \frac{x_7 + N_0(^{7}Be)\,(1 - e^{-\lambda t})}{x_6}$$

$$R(t') = \frac{x_7' + N_0'(^{7}Be)\,(1 - e^{-\lambda t'})}{x_6'}$$

$$\begin{aligned} \frac{R(t')}{R(t)} &= \frac{[x_7' + N_0'(^{7}Be)\,(1 - e^{-\lambda t'})]x_6}{[x_7 + N_0(^{7}Be)\,(1 - e^{-\lambda t})]x_6'} \\ &= \frac{\left(\dfrac{x_7'}{N_0'(^{7}Be)} + 1 - e^{-\lambda t'}\right)\dfrac{x_6}{N_0(^{7}Be)}}{\left(\dfrac{x_7}{N_0(^{7}Be)} + 1 - e^{-\lambda t}\right)\dfrac{x_6'}{N_0'(^{7}Be)}} \end{aligned}$$

mais :

$$\frac{x_6}{N_0(^{7}Be)} = \frac{x_6'}{N_0'(^{7}Be)} = \frac{\sigma(^{6}Li)}{\sigma(^{7}Be)}$$

de même :

$$\frac{x_7}{N_0(^{7}Be)} = \frac{x_7'}{N_0'(^{7}Be)} = \frac{\sigma(^{7}Li)}{\sigma(^{7}Be)}.$$

On a donc, en désignant par S_7 ces derniers rapports :

$$\frac{R(t')}{R(t)} = \frac{S_7 + 1 - e^{-\lambda t'}}{S_7 + 1 - e^{-\lambda t}}.$$

En faisant, dans cette dernière expression :

$$t = 0 \quad \text{et} \quad t' = t$$

on peut écrire :

$$R(t) = R_0,$$

et :

$$R(t) = R_0 + \frac{R_0}{S_7}\,(1 - e^{-\lambda t}) \tag{3}$$

ou encore :

$$R(t) = R_0 + \frac{1 - e^{-\lambda t}}{S_6}. \tag{4}$$

Les diverses expressions de R donnent les valeurs réelles du rapport $^{7}Li/^{6}Li$ qu'on devrait mesurer ; cependant, le spectromètre de masse introduit une discrimination de masse dont on fera l'analyse à la fin de ce chapitre. Il faut donc introduire un facteur de correction α tel que :

$$R = \alpha r,$$

où r est le rapport mesuré et R le rapport réel. Les relations (3) et (4) deviennent alors :

$$r(t) = r_0 + \frac{r_0}{S_7}\,(1 - e^{-\lambda t}) \tag{3'}$$

$$r(t) = r_0 + \frac{(1 - e^{-\lambda t})}{\alpha S_6}. \tag{4'}$$

On voit que α n'apparaît pas dans (3′). On peut donc obtenir $\sigma(^{7}Li) = S_7\sigma(^{7}Be)$ indépendamment de ce facteur.

Si $t = \infty$ on tire de (3) et (3') :

$$S_7 = \frac{r_0}{r_\infty - r_0} = \frac{R_0}{R_\infty - R_0}$$

On peut déterminer r_∞ et r_0 d'après les mesures faites aux temps t, t' et éventuellement t''.

Ainsi dans la figure 17 nous avons désigné par x l'expression $1 - e^{-\lambda t}$ et construit la droite :

$$r = r_0\left(1 + \frac{x}{S_7}\right)$$

dont l'équation est tirée de (3').

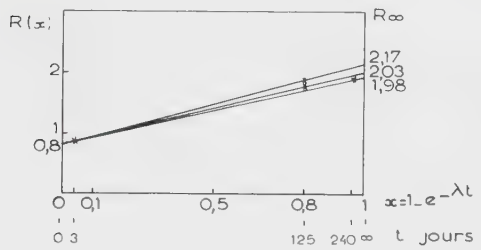


FIG. 17. — *Variation de* $R(x) = R_0\left(1 + \frac{x}{S_7}\right)$ *en fonction de la décroissance de* Be_7.

L'intersection de cette droite avec l'axe des ordonnées et avec la droite $x = 1$ donne respectivement r_0 et r_∞.

Connaissant α par un calibrage du spectromètre de masse on en déduit :

$$R_0 = \alpha r_0 \quad \text{et} \quad R_\infty = \alpha r_\infty$$

et :

$$S_6 = \frac{S_7}{R_0} \quad \text{d'où} \quad \sigma(^6\text{Li}) = \frac{\sigma(^7\text{Li})}{R_0}.$$

Le tableau VI indique les valeurs de R mesurées en fonction du temps t compté après différentes irradiations.

TABLEAU VI

E_p	Durée d'irradiation	t	$R = \alpha r$	Quantité de Li par analyse
44 MeV	3 heures	15 jours 147 jours	1,40 2,82	10^{-12} g
50 MeV	3 heures	6 jours 140 jours	1,00 3,13	10^{-12} g
156 MeV	3 heures	4 jours 125 jours	0,85 1,79	10^{-13} g
156 MeV	50 heures	240 jours	1,94	10^{-11} g
550 MeV	2 heures	11 jours 257 jours	0,96 2,20	10^{-13} g

Résultats. — Le tableau VII rassemble les valeurs de R_0, R_∞ $\sigma(^7\text{Li})$, $\sigma(^6\text{Li})$ à différentes énergies. On remarquera que nous n'avons pas séparé ^{6}He de ^{6}Li, en raison de la courte période de ^{6}He, mais les valeurs connues de $\sigma(^6\text{He})$ de 1 GeV à 3 GeV (R.7) montrent qu'aux énergies considérées ici $\sigma(^6\text{He})$ doit être petit ($< 0{,}5$ mb). Kalpisch (K.3), dans une expérience récente à 156 MeV où ^{6}He est éliminé, trouve un résultat très voisin du nôtre :

$$\frac{^7\text{Li}}{^6\text{Li}} = 0{,}75 \pm 10\ \%.$$

En comparant cette valeur à celle que nous trouvons : $^7\text{Li}/(^6\text{Li} + ^6\text{He}) = 0{,}80 \pm 10$ p. 100, et compte tenu de la précision, on déduit que $\sigma(^6\text{He}) < 1$ mb à 156 MeV.

Sur la figure 18 nous avons représenté l'évolution comparée de R_0 et R_∞ en fonction de l'énergie des protons.

Il est probable qu'en s'approchant du seuil de formation (25,6 MeV pour ^{7}Li et 28,2 MeV pour ^{6}Li) le rapport R_0 continue d'augmenter.

TABLEAU VII

Cible	E_p (MeV)	$R_0 \pm 10$ p. 100	$R_\infty \pm 10$ p. 100	$\sigma(^7\text{Li})$ ± 20 p. 100 (mb)	$\sigma(^6\text{Li} + ^6\text{He})$ ± 20 p. 100 (mb)	$\sigma(^7\text{Be})$ ± 10 p. 100 (mb)	$\sigma(^7\text{Li} + ^7\text{Be})$ ± 20 p. 100 (mb)
C_{12}	44	1,02	3,1	10,8	10,6	22,0 (*)	32,8
	50	0,78	3,6	7,2	9,2	25,5	32,7
	156	0,80	2,0	7,8	9,8	12,1	19,9
	550	0,76	2,3	5,6	7,4	11,0	16,6

(*) D'après (B.3) normalisé aux valeurs de Cumming (C.2).

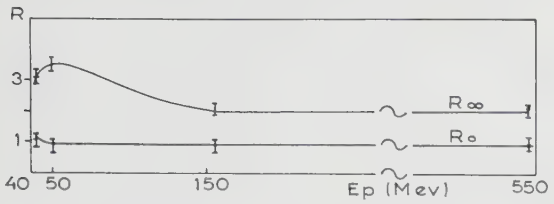


FIG. 18. — *Variation de* R_∞ *et* R_0 *en fonction de l'énergie des protons pour une cible de carbone.*

Précision des mesures. — 1° La première cause d'erreur systématique possible et difficile à évaluer *a priori* pourrait être introduite par la contamination sur la surface des cibles. Pour l'éviter on effectue pour chaque cible une moyenne de dix distillations successives de 30 secondes environ et l'on observe la variation du rapport $^7Li/^6Li$ mesuré pour chaque évaporation et dont la courbe de la figure 19 représente un aspect typique. Pour la première évaporation le rapport a une valeur voisine de 12, attribuée au lithium naturel non éliminé de la surface. Après deux ou trois évaporations, et jusqu'à la dixième environ, il prend une valeur constante. Cependant, la température étant maintenue à 1 300 °K, la quantité de lithium évaporé diminue à chaque opération. On est donc conduit à élever la température, ce qui provoque l'échauffement des parois de l'enceinte et des parties mécaniques du dispositif. Lorsque la température du four approche de 2 000 °K, celles-ci évaporent du lithium naturel et le rapport tend à nouveau vers la valeur 12.

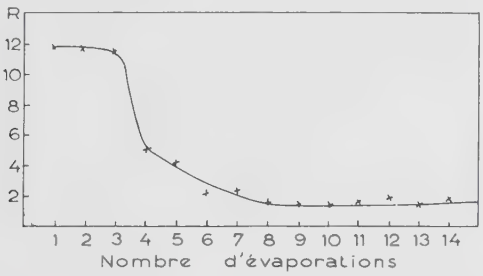


FIG. 19. — *Évolution de* $R = {}^7Li/{}^6Li$ *en fonction du nombre d'évaporations. Les quatre premiers points correspondent à des évaporations de 15 à 30 secondes, les 10 suivants à des évaporations de 1 minute chacune.*

Il est bon de remarquer que la valeur trouvée à 156 MeV est confirmée par l'expérience déjà citée de Klapisch (K.3) où les conditions sont totalement différentes : la source d'ions du spectromètre de masse, où le filament de tungstène est remplacé par du carbone, est placé dans le faisceau de protons. Le rapport $^7Li/^6Li$ de spallation est alors mesuré directement et l'on peut vérifier à tout moment la contribution du lithium naturel en interrompant le faisceau de protons. On peut donc en conclure que dans nos conditions expérimentales, la méthode de distillation n'introduit pas de contamination décelable.

2° On peut craindre également qu'au cours de l'irradiation la cible de carbone ne s'échauffe provoquant ainsi l'évaporation d'une partie du lithium. Comme le béryllium n'a pas les mêmes caractéristiques de diffusion et d'évaporation que le lithium, la valeur du rapport R_∞ aurait été erronnée et par conséquent $\sigma(^6Li)$ et $\sigma(^7Li)$. Pour éliminer cette cause d'incertitude, nous avons procédé (pour 156 MeV) à deux irradiations dans des conditions différentes : dans un cas, les cibles étaient placées dans leur position normale, c'est-à-dire au rayon maximum avec un porte-cible refroidi par courant d'eau ; dans le deuxième cas, la cible était encastrée dans un bloc de graphite (*) de $10 \times 2 \times 1$ cm³ placé à l'entrée du canal magnétique où le faisceau possède une faible densité de courant. Les valeurs de R_∞ trouvées dans ces deux expériences sont : 2,17 et 1,98 ; elles se placent donc très bien dans les marges d'erreurs.

Il serait toutefois important de tenir compte de cet aspect de l'expérience dans certaines conditions, notamment à faible énergie, où l'échauffement risque d'être plus sensible. Aux énergies plus élevées, on vient de voir qu'il n'y a pas lieu de considérer cet effet.

3° La discrimination en masse de l'appareil introduit un facteur de correction α dont il faut tenir compte dans les mesures. Il est bien connu, en effet, que ni la source à ionisation superficielle ni le multiplicateur d'électrons ne conviennent pour des mesures absolues de rapports isotopiques.

Nous avons donc calibré le spectromètre de masse avec du lithium naturel en opérant toujours à une température bien déterminée.

Nos mesures ont donné pour $r = {}^7Li/{}^6Li$ la valeur $11{,}2 \pm 0{,}1$ alors que la valeur admise par Bainbridge et Nier (B.2) dans leur compilation sur les abondances isotopiques est de $12{,}3 \pm 0{,}2$ ce qui nous conduit donc à prendre :

$$\alpha = 1{,}10 \pm 0{,}02$$

Plus récemment, Habfast (H.7) et Ridley (R.8) ont trouvé les valeurs de $12{,}27 \pm 0{,}03$ et $12{,}25 \pm 0{,}04$ respectivement.

4° Les rapports $\rho = {}^7Li/{}^6Li$ mesurés sont en général une moyenne de 30 à 50 spectres du type représenté par la figure 10. Dans ces conditions, l'incertitude sur ρ ne dépasse pas 1 p. 100. A cette erreur s'ajoute 2 p. 100 provenant de la détermination du facteur de correction α.

(*) Je remercie M. Michalowitz de m'avoir facilité l'expérience en soumettant sa cible à cette opération.

DEUXIÈME PARTIE

CHAPITRE III

INTERPRÉTATION DES RÉSULTATS PAR LE MODÈLE DE SERBER. CALCUL DE LA CASCADE INTRANUCLÉAIRE ET DE LA DÉSINTÉGRATION DES NOYAUX RÉSIDUELS

A. — Introduction

Dès les premières études impliquant l'utilisation de particules de grande énergie, Serber (S.2) a proposé un modèle selon lequel l'interaction d'un nucléon d'une centaine de MeV avec un noyau complexe pourrait se décrire d'abord comme une succession de chocs individuels entre le nucléon incident et les nucléons du noyau considéré comme un gaz de Fermi dégénéré (c'est la cascade intranucléaire, dont la durée est de l'ordre du temps de transit du nucléon incident et qui provoque l'émission de quelques nucléons) puis au cours d'une deuxième étape, le noyau résiduel dissipe son énergie d'excitation en évaporant successivement des particules suivant le modèle de Weisskopf (W.3).

Il y a lieu de bien remarquer que la première étape, y compris l'équipartition de l'énergie d'excitation, est rapide et que c'est l'évaporation de plusieurs particules l'une après l'autre qui est lente.

Notre travail devant porter sur les noyaux légers, nous montrerons dans ce chapitre que les calculs de cascades que nous avons effectués sur le carbone sont valables bien que la méthode de Monte Carlo puisse de prime abord paraître inapplicable à un noyau possédant un si petit nombre de nucléons. De plus, il convient, pour les noyaux légers, d'élargir la notion même de spallation, terme qui désigne le modèle de Serber. En effet comme nous le verrons plus loin, le processus d'évaporation ne peut convenir aux noyaux légers fortement excités, et nous serons amenés à considérer que la dissipation de l'énergie d'excitation se produit par l'émission *simultanée* de particules ou de fragments.

Nous conserverons cependant le terme de spallation pour désigner ce mécanisme en deux étapes : cascade suivie de la rupture immédiate du noyau résiduel (Dans tout ce qui suit nous désignerons par noyaux résiduels les noyaux excités produits par la cascade et par noyaux finals ceux qui résultent de l'intervention des deux étapes de la réaction).

Pour les noyaux cibles légers comme ^{12}C ou ^{16}O on considérait jusqu'ici les fragments tels que Li ou Be comme des résidus de spallation plutôt que comme des particules émises. D'après la nouvelle image de la désintégration des noyaux résiduels, qui se rapproche plus d'un éclatement que d'une évaporation, cette distinction devient caduque.

C'est avec cette nouvelle optique que nous avons calculé les sections efficaces de production de ^{6}He, ^{6}Li, ^{7}Li, ^{8}Li, ^{9}Be, ^{10}Be, ^{10}B, ^{11}B, ^{10}C et ^{11}C par des protons de 156 MeV sur ^{12}C.

Le calcul simule les deux étapes de la spallation : la cascade d'après le modèle de Goldberger (G.5) et la rupture du noyau résiduel selon un modèle statistique proposé par Fermi en 1950 (F.2). Nous verrons que l'accord avec les valeurs expérimentales est très satisfaisant.

Le modèle de Weisskopf, tout en se distinguant du précédent par la non simultanéité de l'émission, présente de même un caractère statistique et il est remarquable de constater que son utilisation par Hudis et Miller (H.4) et le groupe de Dostrovsky (D.2) pour l'évaporation de fragments par les *noyaux lourds* conduise également à un très bon accord avec l'expérience.

On peut alors se demander s'il est souhaitable, comme le proposent certains auteurs (W.4) (C.3) (C.4), d'abandonner le modèle en deux étapes pour expliquer l'émission de fragments. Cette question sera discutée à la fin du présent chapitre.

Avant d'envisager l'extension des calculs de cascade au cas des noyaux légers qui nous intéressent, il nous a paru indispensable de les effectuer tout d'abord pour des noyaux lourds afin de comparer nos résultats à ceux des auteurs antérieurs, notamment Metropolis *et al.* (M.2).

Ces calculs préliminaires sur les noyaux lourds ont permis une vérification du programme soumis au calculateur électronique. D'autre part, ils ont pu être utilisés par divers groupes de notre laboratoire pour des études sur la fission et la spallation (P.2) (N.3) (L.3) (L.2) (D.3) et (K.4).

Bien que la méthode de Monte Carlo ait déjà été utilisée pour ce genre de calculs par des nombreux auteurs (G.5) (M.3) (M.4) (B.4) (C.5) (R.5) depuis 1948, c'est seulement récemment que le développement des ordinateurs a considérablement étendu les possibilités de calcul et permis d'améliorer sensiblement les statistiques.

En ce qui nous concerne, nos calculs ont été effectués à l'aide des ordinateurs IBM 7090 et UNIVAC 1107 en code Fortran. Le temps nécessaire au calcul de 10 000 cascades est compris entre 10 et 15 minutes, suivant les noyaux cibles et l'énergie des protons incidents.

B. — La cascade intranucléaire

La cascade nucléonique dans les noyaux lourds. — Le premier calcul de cascade par la méthode de Monte Carlo fut effectué en 1948 par Golberger (G.5) afin de vérifier l'hypothèse de Serber (S.2). Puis Bernardini, Booth et Lindenbaum (B.4) calculèrent par la même méthode les distributions angulaires et énergétiques des nucléons émis au cours de la cascade provoquée par des protons de 340 MeV sur des noyaux de masse 100 et comparèrent les résultats du calcul avec leurs propres expériences. Ces précurseurs furent suivis par beaucoup d'autres chercheurs, notamment Rudstam (R.5) qui, partant de la distribution de l'énergie d'excitation des noyaux résiduels, calcula, par la méthode de Monte-Carlo également, la phase d'évaporation. En 1958, Metropolis, Bivins, Storm, Miller, Friedlander et Turkevitch (M.2) (M.6) donnèrent à ce genre de calcul une extension considérable par l'utilisation d'un calculateur rapide pour l'époque (Maniac).

Les renseignements qu'il est possible d'obtenir par cette méthode concernent :

a) Les particules émises par l'interaction directe :

— leur nombre et leur nature, leur angle d'émission et leur énergie.

b) Les noyaux résiduels :

— leur énergie d'excitation, la transparence et la proportion de noyaux composés,

— leur énergie de recul et leur quantité de mouvement (avec une bonne approximation pour les noyaux lourds).

Afin de comparer nos résultats avec ceux de Metropolis *et al.* (M.2), nous avons repris les hypothèses de ces auteurs, et principalement les suivantes :

— Le noyau est considéré comme un gaz de Fermi constitué de nucléons.

— Le puits de potentiel est rectangulaire.

— Les sections efficaces totales de diffusion élastique nucléon-nucléon sont données par :

$$\sigma_{p-p} = \sigma_{n-n} = (10{,}63/\beta^2 - 29{,}92/\beta + 42{,}9)\text{mb},$$
$$\sigma_{p-n} = \sigma_{n-p} = (34{,}10/\beta^2 - 82{,}2\ /\beta + 82{,}2)\text{mb}.$$

La figure 20, extraite de Metropolis *et al.* (M.2), montre l'accord entre ces expressions et les valeurs expérimentales.

— La distribution angulaire de diffusion nucléon-nucléon dans le système du centre de gravité est représentée par l'expression :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = K(A\cos^4\theta + B\cos^3\theta + 1)$$

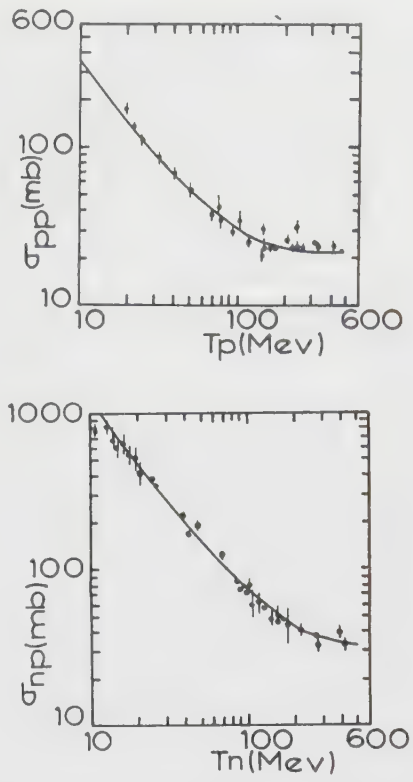


FIG. 20. — *Extrait de* (M.2), *montrant l'accord entre les sections efficaces de diffusion élastique nucléon-nucléon calculées et expérimentales.* T_p *et* T_n *représentent l'énergie des protons et des neutrons incidents.*

A et B étant fonction de l'énergie et de la nature des nucléons. Les valeurs de ces coefficients sont données par le tableau VIII, tiré également de Metropolis *et al.* (M.2).

TABLEAU VIII

Coefficients de $\frac{d\sigma}{d\Omega} = K(A\cos^4\theta + B\cos^3\theta + 1)$.
Extraits de (M.2).

E (MeV)	Collisions *n-n* et *p-p*		Collisions *p-n* et *n-p*	
	A_{ii}	B_{ii}	A_{ij}	B_{ij}
0	0	0	0	0
43	0	0	2,10	— 0,22
86	0	0	5,80	— 0,70
129	0	0	6,95	— 0,56
173	0,05	0	4,30	— 0,10
216	0,29	0	3,50	+ 0,20
259	0,80	0	4,15	+ 0,50
302	1,85	0	5,35	+ 0,70

Il a été montré par les auteurs déjà cités que l'accord entre les calculs et l'expérience est en général très bon. Cependant certaines réactions ne peuvent être décrites avec succès par ce modèle simple : c'est le cas des réactions (*p*, *pn*). Pour remédier à cette défaillance il a été proposé (Miller, Friedlander) (M.7) de considérer la matière nucléaire comme inhomogène et plus précisément d'introduire dans les calculs un puits de potentiel à bord diffus. Bertini a étudié en détail cet effet dans un travail récent (B.5).

D'autres améliorations possibles ont été suggérées par Friedlander et Miller (M.7) : réflexion et réfraction des nucléons à la surface du noyau ; leurs calculs préliminaires améliorent certains résultats mais augmentent anormalement la proportion de noyaux composés.

Les calculs que nous avons effectués se limitent aux hypothèses de Metropolis.

La conduite du calcul de la cascade nucléonique a été exposée de façon assez détaillée par Combe (C.5), Rudstam (R.5) et plus récemment par Abate, Bellini, Fiorini et Ratti (A.2). Par ailleurs, nous avons décrit les différentes phases du calcul comprenant par exemple la cinématique ou l'utilisation des nombres aléatoires dans un rapport interne du Laboratoire (G.6).

Nous n'en rappellerons ici que les grandes lignes :

— Le *principe de calcul*, qui donne son nom à la méthode de Monte Carlo est le suivant : si l'on a, d'une part une distribution uniforme de nombres H compris entre 0 et 1, et, d'autre part la probabilité $p(u)\,du$ d'apparition d'une variable x entre u et $u + du$, on peut écrire, si $a \leqslant x \leqslant b$:

$$\mathrm{H} = \int_a^x p(u)du$$

avec :

$$1 = \int_a^b p(u)du. \qquad (5)$$

Cela signifie que si l'on tire un grand nombre de valeurs de H au hasard, par exemple avec une roulette (*), et que l'on calcule les valeurs de x correspondantes d'après la relation (5), ces valeurs de x sont réparties suivant la distribution :

$$\frac{d\omega}{dx} = p(x).$$

Si la fonction $p(u)$ de la relation (5) n'est pas une fonction explicite, on a recours à la méthode de Von Neumann qui peut se résumer de la manière suivante : construisons la courbe $y = f(x) = \dfrac{p(x)}{\max\,[p(x)]}$ dans l'intervalle (a, b) (fig. 21). Tirons 2 nombres H et H′ et plaçons sur ce diagramme le point :

$$y = \mathrm{H}'$$
$$\xi = a + (b - a)\mathrm{H}$$

si ce point tombe au-dessous de la courbe, on prend :

$$x = \xi$$

sinon, on n'en tient pas compte et l'on tire à nouveau 2 nombres H et H′. On recommence jusqu'à ce qu'on obtienne un point au-dessous de la courbe. Cette méthode donnera des valeurs de x distribuées suivant $p(x)$. En effet, en « jetant » sur le rectangle de la figure 21 un grand nombre de points, la proportion du nombre de ξ compris entre x et $x + dx$ par rapport au nombre total de ξ retenus est égale au rapport de la surface du petit rectangle $f(x)dx$ à celle de l'aire de la courbe, c'est-à-dire :

$$\frac{f(x)dx}{\int_a^b f(x)dx}$$

Cette expression est égale à $p(x)$.

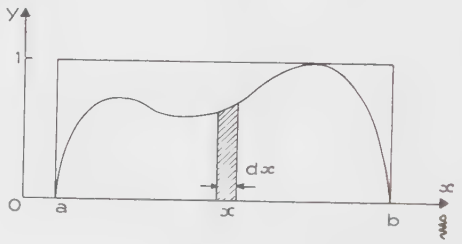


FIG. 21. — *Diagramme schématisant l'application de la méthode de Von Neumann*

Disposant de la relation (5) et de la méthode de Von Neumann, nous les appliquons aux étapes successives de calcul :

1° Détermination du point d'entrée du nucléon incident dans le noyau.

2° Détermination du parcours avant le premier choc.

3° Choix de la nature du nucléon rencontré.

4° Détermination de la quantité de mouvement et de la direction du nucléon rencontré (distribution de Fermi).

5° Détermination des angles de diffusion dans le système du centre de masse.

A ce point les données sont suffisantes pour effectuer le calcul de la cinématique du premier choc. Puis, pour chacun des deux nucléons partenaires de la collision, le calcul est repris au point 2.

A chaque collision, le principe de Pauli est appliqué en stipulant que si l'un des deux nucléons possède après le choc une énergie inférieure à l'énergie de Fermi E_F, le choc est interdit et le calcul se poursuit comme si le choc n'avait pas eu lieu (voir G.6).

(*) Dans le cas où l'on utilise un ordinateur, il existe un programme de génération des nombres H uniformément distribués.

L'énergie de Fermi s'exprime par :

$$E_F = p^2_{max}/2\,m$$

où :

$$p_{max} = \frac{\hbar}{r_0}\left(\frac{9\pi\mathcal{N}}{4A}\right)^{1/3}$$

$\mathcal{N}$ étant le nombre de neutrons ou de protons considérés,

A le nombre de masse du noyau, r_0 le « rayon » d'un nucléon.

Nous avons pris dans tous les cas $r_0 = 1{,}3$ fermi.

L'énergie d'excitation E^* est donnée par l'égalité :

$$E^* = E_i + B_i - \sum_{k=1}^{n}(E_k + B_k)$$

E_i et B_i sont l'énergie cinétique et l'énergie de liaison du nucléon incident,

E_k, l'énergie cinétique disponible dans la voie k,

B_k, l'énergie de liaison du nucléon k émis.

Dans le cas des noyaux lourds, on peut considérer que E_k est l'énergie cinétique de la particule k émise. En effet E_k est l'énergie cinétique à répartir entre la particule qui sort et le noyau : si le noyau est lourd, il n'emporte qu'une très faible partie de l'énergie cinétique. Par exemple, si l'on considère un noyau composé produit par un proton de 156 MeV sur ^{238}U, l'énergie cinétique de ^{239}Np est d'environ 0,7 MeV.

En admettant cette approximation on peut donc aussi calculer la quantité de mouvement du noyau résiduel :

$$\vec{p}_R = \vec{p}_i - \Sigma\vec{p}_k$$

où :

$$|\vec{p}_k| = (2\,mE_k)^{\frac{1}{2}}$$

Pour obtenir des résultats comparables à l'expérience, on simule ainsi un grand nombre de cascades. Dans le cas d'événements assez fréquents, il suffit de calculer 1 000 cascades pour avoir une statistique assez bonne.

Résultats. — La figure 22 permet de comparer nos résultats avec ceux de Friedlander (F.3) concernant la répartition des différentes cascades provoquées par 1 000 protons de 156 MeV sur ^{238}U.

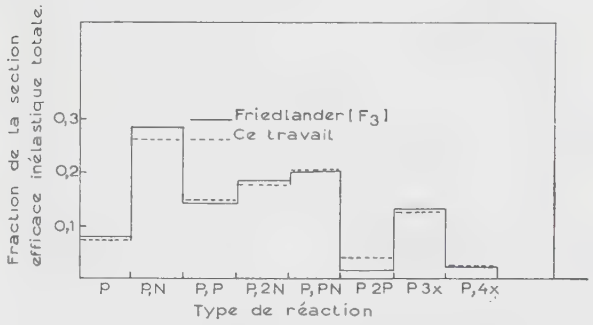


FIG. 22. — *Distribution des différentes cascades provoquées par des protons de 156 MeV sur* ^{238}U.

La figure 23 indique la distribution de l'énergie d'excitation des noyaux résiduels après les cascades p, p et p, n provoquées par des protons de 82 MeV sur ^{140}Ce. Le décalage aux énergies d'excitation élevées provient de ce que Métropolis *et al.* prennent la même barrière pour les protons et les neutrons.

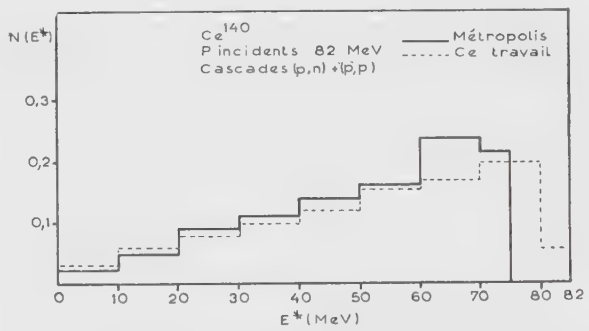


FIG. 23. — *Distribution de l'énergie d'excitation après l'émission d'un nucléon au cours des cascades provoquées par des protons de 82 MeV sur* ^{140}Ce.

TABLEAU IX

Comparaison de l'énergie moyenne d'excitation $\bar{E}^*$ *calculée par* Metropolis (M.2) *et au cours de ce travail pour* ^{238}U *et* ^{140}Ce.

$\bar{E}^*$ (MeV).

	Cascades	p, n	p, p	$p, 2n$	p, pn	$p, 2p$	$p, 3n$	$p, p2n$	$p, 2pn$
^{238}U	Métropolis (M.2)	94,8	76,8	81,2	58,4	42,3	61,1	52,3	30,0
156 MeV	Ce travail	102	64,5	93,1	55,7	32,4	82,4	64,5	46,5
^{140}Ce	Métropolis (M.2)	53,0 ± 18,0	44,6 ± 16,7	36,5 ± 10,5	26,1 ± 13,1	17,8 ± 12,6			
82 MeV	Ce travail	55,8	39,2	48,2	34,2	20,8			

Les tableaux IX et X représentent nos résultats et ceux de Métropolis concernant l'énergie d'excitation moyenne et le nombre moyen de nucléons émis. Cette comparaison montre que, compte tenu des écarts statistiques, le programme que nous avons mis au point et dont l'organigramme est représenté sur la figure 24, donne des résultats satisfaisants. Aussi avons-nous décidé de l'utiliser pour les noyaux légers avec certaines modifications qui seront décrites plus loin.

TABLEAU X

$\frac{\Sigma n}{\Sigma p}$: rapport du nombre total de neutrons émis au nombre total de protons émis.

$\bar{n}$: nombre moyen de neutrons émis par réaction inélastique.

$\bar{p}$: nombre moyen de protons émis par réaction inélastique.

$\overline{n+p}$: nombre moyen de nucléons émis par réaction inélastique.

		$\frac{\Sigma n}{\Sigma p}$	$\bar{n}$	$\bar{p}$	$\overline{n+p}$
^{238}U 156 MeV	(M.2)	1,97	0,87	0,44	1,31
	(G)	2,36	0,97	0,41	1,38
^{140}Ce 156 MeV	(M.2)	1,37	0,90	0,65	1,55
	(G)	1,61	0,89	0,55	1,44
^{140}Ce 82 MeV	(M.2)	1,8	0,54	0,30	0,84
	(G)	2,2	0,56	0,26	0,82

(G) Ce travail.

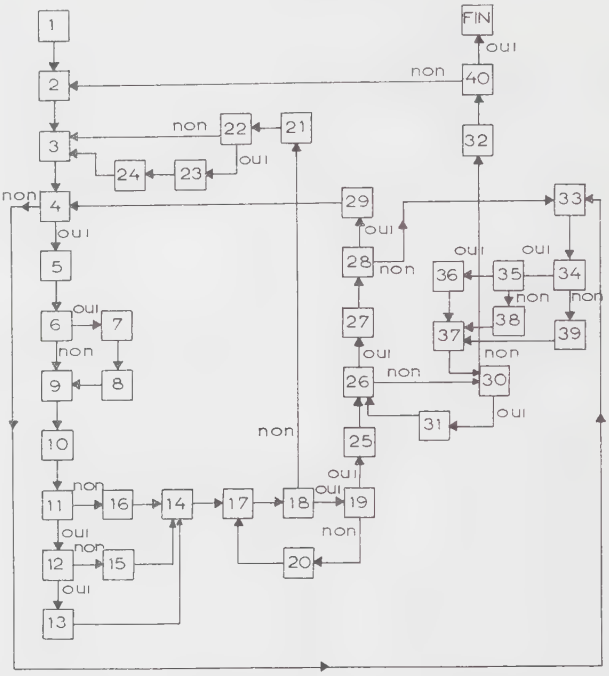


FIG. 24. — *Organigramme du calcul des cascades nucléon-nucléon et nucléon-alpha.*

Clef de l'organigramme de la figure 24

[1] Lecture des données. Énergie incidente et nature du nucléon incident. Energie de liaison, etc.
[2] Détermination du point d'impact du nucléon incident sur le noyau.
[3] Calcul de la distance parcourue sans choc.
[4] Cette distance conduit-elle à l'intérieur du noyau ? C'est-à-dire y aura-t-il un choc ?
[5] S'agit-il du nucléon initial (celui du faisceau) ?
[6] Calcul des coordonnées du point de collision.
[7] Z = Z + 1 (Z du noyau).
[8] Calcul de l'énergie de Fermi.
[9] Choix du partenaire : proton, neutron ou alpha.
[10] Choix de l'impulsion (grandeur et angles) du partenaire.
[11] Le choc a-t-il eu lieu sur une particule α ?
[12] Est-ce un choc $p - \alpha$?
[13] Choix de l'angle de diffusion Θ dans le système du centre de gravité pour un choc $p - \alpha$.
[14] Choix de la précession Φ dans le système du centre de gravité.
[15] Choix de Θ pour un choc $n - \alpha$.
[16] Choix de Θ pour un choc nucléon-nucléon.
[17] Calcul de l'impulsion et de l'énergie de l'un des deux nucléons après le choc.
[18] Principe de Pauli : $E > E_F$?
[19] L'impulsion et l'énergie du 2e nucléon ont-elles été calculées ?
[20] Réinjection des paramètres du 2e nucléon avant le choc.
[21] Le choc a été interdit : réinjection des caractéristiques du nucléon précédent.
[22] S'agit-il du nucléon initial ?
[23] Z = Z du noyau cible.
[24] Calcul de l'énergie de Fermi.
[25] Mise en réserve des caractéristiques du 2e nucléon après le choc.
[26] L'énergie du 1er nucléon est-elle $> E_B$.
[27] Calcul des angles dans le système du laboratoire.
[28] La particule est-elle un nucléon ?
[29] Calcul de la distance du point du dernier choc à la surface du noyau, dans la direction du nucléon.
[30] Y a-t-il des particules en réserve ?
[31] Réinjection des caractéristiques de la particule en réserve.
[32] Fin de la cascade. Calcul de E*. Classement du noyau résiduel.
[33] La particule sort du noyau.
[34] S'agit-il d'un nucléon ?

[35] S'agit-il d'un proton ?
[36] Z = Z — 1 (Z du noyau).
[37] Calcul de l'énergie de Fermi.
[38] N = N — 1 (N du noyau).
[39] Z = Z — 2 et N = N — 2 (Z et N du noyau).
[40] Le nombre de cascades prévu a-t-il été calculé ?

Nous ne donnerons pas ici d'autres résultats relatifs aux noyaux lourds. Nous en avons déjà publiés quelques-uns (G.7) et d'autres l'ont été par divers chercheurs du laboratoire en même temps que leurs propres travaux. Ils se divisent en deux groupes :

— Distribution des noyaux résiduels et de leur énergie d'excitation utilisée par Poffe (P.2) pour les réactions p, xn (^{140}Ce, ^{198}Au à 82 et 156 MeV, Nguyen-Longden (N.3) pour les réactions p, $3p$, $3n$ (^{140}La à 156 MeV), Leduc (L.2) pour les réactions p, n (^{52}Cr à 156 MeV), Da Silveira (D.3) pour la spallation du bismuth (^{209}Bi à 57, 77, 95, 117 et 156 MeV), Lefort, Simonoff et Tarrago (L.3) dans leur étude sur la désexcitation du dysprosium (^{140}Ce à 82, 110, 156 MeV).

— Distribution de la quantité de mouvement des noyaux résiduels dont a tenu compte Kovalski (K.4) pour une étude sur la fission de différents éléments (^{238}U, ^{198}Au, ^{209}Bi à 156 MeV).

Cas des noyaux légers. — Il semblait *a priori*, ainsi que nous l'avons déjà fait remarquer, que le calcul de cascade ne puisse s'appliquer aux noyaux légers comme le carbone, l'azote ou l'oxygène. D'une part parce qu'on assimile un petit nombre de nucléons à un gaz de Fermi alors que ce modèle statistique est valable pour un grand nombre, d'autre part, parce que chaque nucléon doit jouer un rôle particulier correspondant à son état propre.

Or une première tentative de Combe (C.5) en 1956 avait déjà montré qu'il était possible d'obtenir des résultats compatibles avec l'expérience. Pour améliorer ses calculs il utilisa l'hypothèse de Cuer et Combe (C.6) sur l'existence de sous-structures α dans ^{12}C. De même, Abate *et al.* ont obtenu des résultats plus satisfaisants en tenant compte de sous-structures α dans ^{12}C.

D'autres auteurs ont également appliqué la méthode de Monte Carlo aux noyaux légers : K. Chen *et al.* (^{11}B et ^{7}Li) cités par Schwarzschild (S.3) dans une étude sur la production éventuelle de ^{5}H. Bertini (B.5) a de même effectué des calculs sur le carbone et le lithium.

Le caractère particulier de nos calculs est de prendre en considération l'émission des particules alpha, ce qui n'avait pas été envisagé par les auteurs précédents.

Nous avons pu comparer nos résultats avec certaines expériences qui suggèrent la réalité d'une diffusion élastique des particules incidentes sur des sous-structures alpha, notamment celles de Samman et Cüer (S.4) et de James et Pugh (J.1). Nous verrons plus loin que la comparaison est satisfaisante.

Description du calcul de la cascade nucléons-alphas dans le cas des noyaux légers. — Avec la présence d'alphas dans le noyau, le déroulement du calcul de la cascade doit être modifié, et l'on procède alors de la façon suivante :

a) tout nucléon en mouvement dans le noyau a une certaine probabilité au moment où il va provoquer une collision, de heurter soit un autre nucléon, soit une particule alpha. La probabilité de choc sur une particule alpha peut être choisie comme on le verra plus loin entre 0 et 0,4 ;

b) le calcul de la diffusion nucléon-alpha se complique du fait qu'on ne dispose pas d'une expression analytique de $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ mais seulement de courbes expérimentales et que de plus celles-ci ne couvrent pas tout le domaine d'énergie utilisé lors des calculs à 156 MeV.

Pour les chocs proton-alpha, nous avons eu recours aux données expérimentales de Selove et Teem (S.5) à 30 et 95 MeV et de Cormack *et al.* (C.7) à 66 et 147 MeV.

Pour la diffusion neutron-alpha la formule de Tannenwald (T.2) :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \mathrm{K}e^{-50^2}$$

est valable jusqu'à 90 MeV. Nous avons admis la validité de cette expression pour toutes les énergies.

c) Nous admettrons qu'après un choc, sur un nucléon ou sur une particule α, les nucléons peuvent continuer la cascade ; par contre, une particule α qui a subi une collision, n'a que deux possibilités : ou bien elle est expulsée du noyau si l'énergie que le nucléon lui a communiquée est suffisante, ou bien elle reste dans le noyau et son énergie contribue à l'énergie d'excitation du noyau.

Dans aucun de ces deux cas, elle ne peut produire d'autres collisions. Cette hypothèse s'admet facilement pour les noyaux légers. L'organigramme de la figure 24 résume cette description.

d) Enfin nous avons supposé que les particules alpha dans le puits ont toutes la même énergie, contrairement aux nucléons dont la quantité de mouvement satisfait à la distribution de Fermi. Nous avons pris $E_0 = 5$ MeV, valeur proche de 5,8 MeV, énergie moyenne des particules déterminée expérimentalement par Samman et Cuër (S.4).

Résultats. — *a*) **Comparaison avec les expériences d'interaction directe.** — Celles-ci concernent deux types différents de réactions : d'une part les réactions (p, $p\alpha$) et d'autre part les réactions (p, $2pxn$) et (p, $3pxn$).

Nous comparerons le résultat de nos calculs avec les données expérimentales en donnant à P (probabilité de choc d'un nucléon avec une sous-structure α) les valeurs 0 ; 0,3 et 0,4. Pour les réactions (p, $p\alpha$), il est évident que P ne doit pas être nul : nous l'avons pris

égal à 0,4 et nous verrons que l'accord est bon. Comme le montre le tableau XI les réactions $(p, 2pxn)$ indiquent que les résultats du calcul sont nettement plus satisfaisants si l'on tient compte des sous-structures α. Par contre la valeur de P ne semble pas améliorer de façon critique le calcul des réactions $(p, 3pxn)$.

1) *Expérience de James et Pugh* (J.1). — Ces auteurs ont étudié la distribution angulaire des particules alpha émises lors de la réaction ^{12}C $(p, p\alpha)$ à 150 MeV.

Les deux particules émergentes sont détectées en coïncidence pour une énergie des particules α émises comprise entre 18,5 et 26,5 MeV. L'angle du proton émis est fixé à 45°, celui de la particule α varie de 0° à 180°.

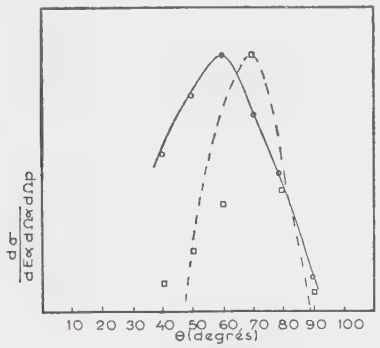


FIG. 25. — *En trait plein, résultats expérimentaux de* (J.1). *En pointillé, nos calculs.* θ *est l'angle d'émission de la particule* α *dans le système du laboratoire. Energie des protons incidents : 150 MeV.*

La figure 25 permet de comparer les valeurs de $\frac{d\sigma}{dE_\alpha d\Omega_\alpha d\Omega_p}$ expérimentales et calculées. Pour le calcul nous avons pris :

$$40^\circ < \theta_p < 50^\circ$$

et :

$$15 \text{ MeV} < E_\alpha < 30 \text{ MeV}.$$

L'énergie incidente des protons est de 156 MeV et le nombre d'événements calculés est de 4 000.

On voit que l'accord est convenable mais pourrait être amélioré en donnant aux sous-structures α une distribution de quantité de mouvement non uniforme.

2) *Expériences de Yuasa et Poulet* (Y.3) *et de Yuasa, Bowden et Bowman* (Y.4). — Nous considérons ici les réactions, ^{12}C $(p, 2pxn)$ à 110 MeV et ^{12}C $(p, 3pxn)$ à 135 MeV. Les grandeurs comparables sont indiquées d'une part dans le tableau XI pour les sections efficaces, et d'autre part sur les figures 26 et 27 pour les spectres d'énergie d'excitation E*, ou plus précisément de ΔE :

$$\Delta E = E^* + (n - 1)B, \qquad (6)$$

n et B étant le nombre et l'énergie de liaison des nucléons émis. Sous la forme (6) ΔE est facilement calculable.

TABLEAU XI

E_p	P	Réactions	σ calc. mb	σ exp. mb
156 180	0,4	^{12}C $(p, p\alpha)$	37-59	33 (S.4)
156 » 135 »	0,4 0 0,4 0	^{12}C $(p, 3pxn)$	2,4 8,4 1,9 5,8	4 (Y.4)
156 » 110 » »	0,4 0 0,4 0,3 0	^{12}C $(p, 2pxn)$	28 57 20 25 41	29 ± 5 (Y.3)

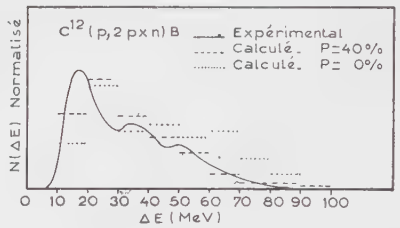


FIG. 26. — *En trait plein, résultat expérimental de* (Y.3) *Dans les calculs, P représente la probabilité de collision d'un nucléon avec une sous-structure alpha. Énergie des protons incidents : 110 MeV.*

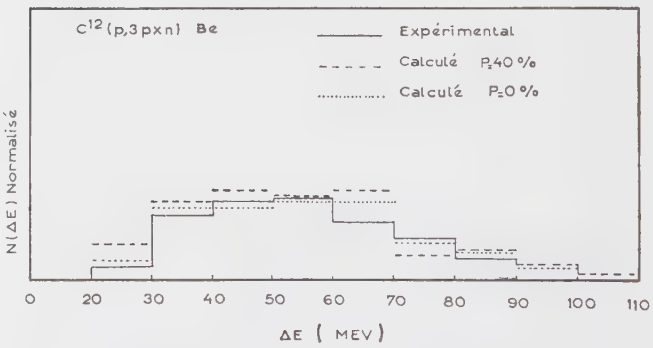


FIG. 27. — *En trait plein, résultats expérimentaux de* (Y.4). *Dans les calculs P représente la probabilité de collision d'un nucléon avec une sous-structure alpha. Énergie des protons incidents : 135 MeV.*

Pour mesurer ΔE expérimentalement il faut l'exprimer différemment en utilisant l'expression de l'énergie d'excitation déjà donnée plus haut :

$$E^* = E_i + B_i - \sum_{k=0}^{n} (E_k + B_k)$$

si $B_i = B_k = B$ on a :

$$E^* = E_i - \sum_{k=0}^{n} E_k - (n - 1)B$$

d'où, compte tenu de (6) :

$$\Delta E = E_i - \sum_{k=0}^{n} E_k.$$

Pour chaque valeur du paramètre P, le nombre d'événements calculés est compris entre 5 000 et 9 000.

3) *Expérience de Samman et Cüer* (S.4). — Ces auteurs ont mesuré la section efficace du processus direct $(p, p\alpha)$ sur ^{12}C et donnent comme valeurs minima :

33 mb à 180 MeV et 22 mb à 340 MeV.

Nous trouvons par le calcul à 156 MeV :

37 mb (1 000 cascades calculées)

et :

59 mb (10 000 cascades)

suivant les énergies de liaison données aux nucléons.

b) **Autres résultats.** — 1° *Section efficace totale inélastique de la réaction* $^{12}C + p$. — Muirhead et Rosser (M.8) donnent la valeur expérimentale de 210 ± 30 mb à 140 MeV.

Comme on peut le déduire des nombres de transparence indiqués au-dessous des tableaux XII et XIII, en prenant 300 mb comme section efficace géométrique de ^{12}C, on obtient par le calcul :

si : $P = 0$ $\sigma_t = 171$ mb (10 000 cascades)
si : $P = 0{,}4$ $\sigma_t = 180$ mb (10 000 cascades).

La figure 28 représente la variation de la transparence en fonction de l'énergie du proton incident (chaque point représente le résultat du calcul de 1 000 cascades). L'absence de données expérimentales au-dessous de 140 MeV empêche de conclure. Il semble cependant

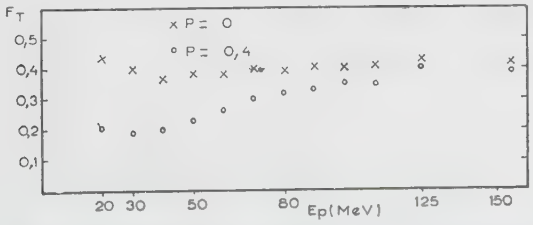


FIG. 28. — *Variation de* F_T, *fraction du nombre total de protons incidents traversant une cible de carbone sans interaction, en fonction de l'énergie incidente. On note aux faibles énergies la contradiction due au principe de Pauli.*

que la transparence doive diminuer rapidement au-dessous d'une centaine de MeV. En effet la section efficace de diffusion élastique nucléon-nucléon augmente alors sensiblement (voir fig. 20) et le libre parcours moyen $\lambda = \dfrac{4/3\pi r_0^3}{\sigma_e}$ diminue dans les mêmes proportions.

L'hypothèse $P = 0{,}4$ semblerait donc dans ce cas plus favorable, mais on doit considérer que pour les faibles énergies l'approximation d'impulsion devient de moins en moins valable et par suite le calcul lui-même. Il faut ajouter à ceci qu'une contradiction apparente se manifeste aux environs de 30 MeV et au-dessous où l'on observe (fig. 28) une remontée de la transparence. Ceci s'explique par la façon dont le principe d'exclusion de Pauli est appliqué dans le calcul. Comme nous l'avons indiqué plus haut, on considère que si l'un des deux nucléons possède après le choc une énergie inférieure à l'énergie de Fermi, ce choc est interdit et le nucléon incident continue sa trajectoire jusqu'au prochain choc (Cela revient à augmenter le libre parcours moyen $\lambda = 4/3\pi r_0^3/\sigma_e$). Cette méthode conduit à de bons résultats pour les énergies assez élevées, mais pour les très faibles énergies le noyau tendrait donc à devenir totalement transparent (puisqu'un choc qui donnerait aux 2 nucléons une énergie plus grande que E_F devient de plus en plus improbable).

2° *Énergie moyenne d'excitation.* — La figure 29 montre comment l'énergie d'excitation moyenne $\bar{E}^*$ varie en fonction de l'énergie du proton incident, pour les deux cas $P = 0$ et $P = 0{,}4$. Chaque point est

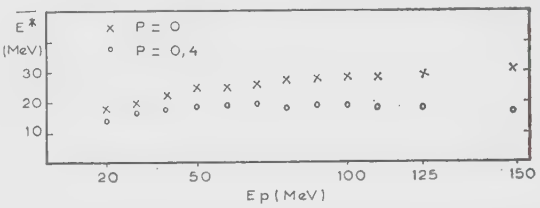


FIG. 29. — *Variation de l'énergie moyenne d'excitation en fonction de l'énergie des protons incidents, pour une cible de carbone.*

obtenu par le calcul de 1 000 cascades. Si l'on compare les 2 valeurs calculées à 156 MeV ($\bar{E}^* = 30$ MeV pour $P = 0$ et $\bar{E}^* = 17$ MeV pour $P = 0{,}4$) avec la valeur expérimentale de 27 ± 5 MeV mesurée par Gross (G.8) à 190 MeV, on constate que le choix de l'une ou l'autre hypothèse n'est pas décisif.

c) **Distribution des noyaux résiduels et spectre d'énergie d'excitation de la réaction** $^{12}C + p_{156\ MeV}$. — Les tableaux XII et XIII et les figures 30 et 31 indiquent les résultats obtenus à la suite de 10 000 cascades pour chacun des deux cas $P = 0$ et $P = 0{,}4$ respectivement.

Ces noyaux résiduels et leurs spectres d'énergie d'excitation constituent la base du calcul de la 2e étape devant conduire aux sections efficaces finales de la réaction $^{12}C + p_{156MeV}$ comme nous le verrons au paragraphe suivant.

TABLEAU XII

Fréquence d'apparition des divers noyaux résiduels calculée pour les cascades induites par des protons de 156 MeV sur ^{12}C (Pour P = 0).

Type de cascade	Noyau résiduel	Nombre	Type de cascade	Noyau résiduel	Nombre	Type de cascade	Noyau résiduel	Nombre
p	^{13}N	0	*p*, 2*p*	^{11}B	1 253	*p*, 3*p*	^{10}Be	231
p, *n*	^{12}N	253	*p*, 2*pn*	^{10}B	709	*p*, 3*pn*	^{9}Be	117
p, 2*n*	^{11}N	121	*p*, 2*p*2*n*	^{9}B	158	*p*, 3*p*2*n*	^{8}Be	31
p, 3*n*	^{10}N	15	*p*, 2*p*3*n*	^{8}B	10	*p*, 3*p*3*n*	^{7}Be	0
p, *p*	^{12}C (*)	604	*p*, 2*p*4*n*	^{7}B	1			
p, *pn*	^{11}C	1 550				*p*, 4*p*	^{9}Li	27
p, *p*2*n*	^{10}C	348				*p*, 4*pn*	^{8}Li	6
p, *p*3*n*	^{9}C	36				*p*, 4*p*2*n*	^{7}Li	1

Nombre de protons incidents : 10 000.
Nombre de transparences : 4 306.
Total : 9 777. Les noyaux résiduels manquants sont produits par des cascades émettant plus de 6 nucléons et ne sont pas utiles pour le calcul de la deuxième étape.
(*) Transparences non comprises.

TABLEAU XIII

Fréquence d'apparition des divers noyaux résiduels calculée pour les cascades induites par des protons de 156 MeV sur ^{12}C (Pour P = 0,4).

Type de cascade	Noyau résiduel	Nombre	Type de cascade	Noyau résiduel	Nombre	Type de cascade	Noyau résiduel	Nombre
p	^{13}N	0	*p*, 2*p*	^{11}B	546	*p*, 3*p*	^{10}Be	32
p, *n*	^{12}N	174	*p*, 2*pn*	^{10}B	112	*p*, 3*pn*	^{9}Be	6
p, 2*n*	^{11}N	21	*p*, 2*p*2*n*	^{9}B	11	*p*, 3*p*2*n*	^{8}Be	1 980
p, 3*n*	^{10}N	3	*p*α			*p*, α*p*		
p, *p*	^{12}C (*)	499	*p*, 2*p*3*n*	^{8}B	126	*p*, 3*p*3*n*	^{7}Be	382
p, *pn*	^{11}C	577	*p*, α*n*			*p*, α*pn*		
			p, 2*p*4*n*	^{7}B	21	*p*, 4*p*	^{9}Li	3
p, *p*2*n*	^{10}C	48	*p*, α2*n*					
p, *p*3*n*	^{9}C	3				*p*, α2*p*	^{8}Li	0
			p, α3*p*	^{6}He	24	*p*, 4*p*2*n*	^{7}Li	311
						p, 4*p*2*n*		
						p, α2*pn*	^{6}Li	96

Nombre de protons incidents : 10 000.
Nombre de transparences : 4 036.
Total : 9 011. Les noyaux résiduels manquants sont produits par des cascades émettant plus de 6 nucléons et ne sont pas utiles pour le calcul de la deuxième étape.
(*) Transparences non comprises.

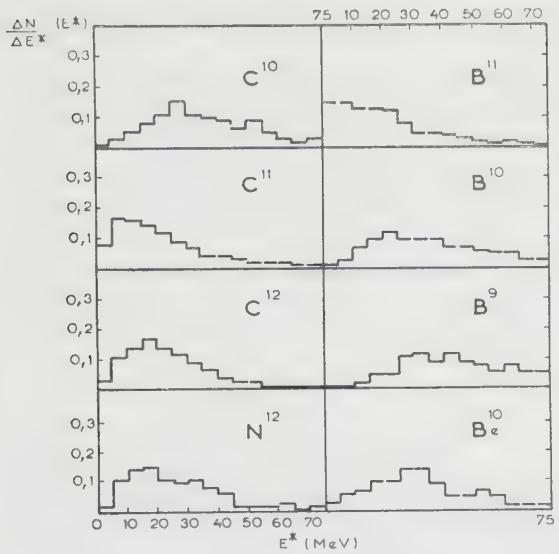


FIG. 30. — *Distribution de l'énergie d'excitation de quelques noyaux résiduels après les cascades provoquées par des protons de 156 MeV sur* ^{12}C, *pour* P = 0.

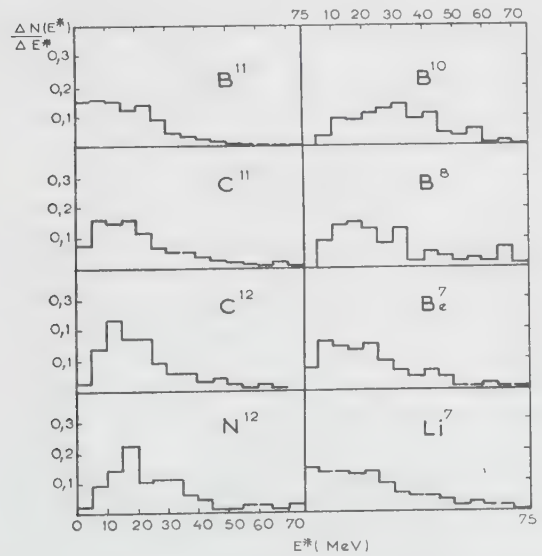


FIG. 31. — *Distribution de l'énergie d'excitation de quelques noyaux résiduels après les cascades provoquées par des protons de 156 MeV sur* ^{12}C, *pour* P = 0,4.

C. — Deuxième étape : désexcitation des noyaux résiduels

Noyaux lourds. — Différents procédés ont été employés pour calculer la désexcitation des noyaux résiduels produits par la cascade : soit une méthode d'intégration comme celle de Jackson (J.2) soit la méthode statistique (Monte-Carlo) utilisée par exemple par Rudstam (R.5), Dostrovsky *et al.* (D.2) ou Hudis et Miller (H.4).

En ce qui concerne les noyaux lourds, tous les calculs sont basés sur le modèle statistique de l'évaporation et la formule de Weisskopf (W.3) :

$$W_n(E)dE = \sigma(E_A^*, E)\,\frac{gmE}{\pi^2\hbar^3}\,\frac{\omega_B(E_B^*)}{\omega_A(E_A^*)}\,dE$$

où le premier membre est la probabilité par unité de temps d'émission d'une particule n dont l'énergie est comprise entre E et E + dE pour le noyau A dont l'énergie d'excitation est E_A^*. Le noyau A se transformant alors en un noyau B possédant l'énergie d'excitation E_B^*,

$\sigma(E_A^*, E)$ est la section efficace du processus inverse (capture),

m est la masse de la particule émise,

$g = 2s + 1$, s étant le spin de la particule émise,

$\omega(E^*)$ est la densité de niveaux du noyau correspondant à une énergie d'excitation E^*.

Une caractéristique essentielle de l'évaporation est le fait que, comme tout noyau composé, le noyau qui a émis une particule prend le temps de répartir à nouveau son énergie et perd la mémoire de son histoire antérieure avant d'émettre la particule suivante.

Si cette succession dans le temps est concevable pour les noyaux possédant un grand nombre de nucléons et une énergie d'excitation E^* faible par rapport à l'énergie de liaison totale E_B, il est difficile de l'admettre pour un noyau léger où E^* peut être voisin de E_B.

A cette remarque il faut ajouter que l'emploi du terme de densité de niveaux est fort délicat, comme l'ont souligné Miller et Hudis (M.9). Quant aux noyaux légers, la notion même de densité de niveau est discutable, aussi avons-nous envisagé le calcul de la désintégration des noyaux résiduels légers sous un aspect différent suggéré par Jdanov et Fedotov (J.3).

Noyaux légers. — Fermi proposa en 1950 (F.2) un modèle statistique permettant de calculer la production multiple de particules lors de collisions nucléon-nucléon à grande énergie. Son hypothèse était la suivante : « Si une grande énergie est concentrée en un petit volume de l'espace, elle sera « rapidement » répartie entre les divers degrés de liberté présents dans le volume considéré suivant des lois statistiques ».

En d'autres termes, l'énergie disponible sera immédiatement distribuée entre les états finals possibles proportionnellement à leurs poids statistiques respectifs.

Tenant compte de la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement Lepore et Stuart (L.4) et Rosental (R.6) ont calculé dans le cas de nucléons non

relativistes le poids statistique W correspondant à un état final donné :

$$W = \frac{\left(\frac{V}{\hbar^3}\right)^{n-1} \prod_{j=1}^{n} (2I_j + 1)}{(2\pi)^{3(n-1)/2} \prod_{s=1}^{g} n_s ! \, \Gamma[3(n-1)/2]} \times \frac{T^{(3n-5)/2} \left(\prod_{j=1}^{n} M_j\right)^{3/2}}{\left(\sum_{j=1}^{n} M_j\right)^{3/2}} \qquad (7)$$

où les divers symboles ont la signification suivante :
T : énergie cinétique totale de la réaction,
V : volume d'interaction,
I_j et m_j : spin et masse de la particule j émise,
n : nombre de particules émises,
Γ : est la fonction Γ habituelle.

Si g groupes de n_s particules s identiques sont produits, on tient compte de l'effet d'indiscernabilité par le facteur $\prod_{s=1}^{g} n_s !$

Plus récemment Ericson (E.1) a étudié l'influence de la conservation du moment angulaire sur la multiplicité des pions produits.

Le modèle statistique de Fermi est valable pour un nombre quelconque de particules. Afin de l'utiliser pour le calcul de la désintégration des noyaux excités, nous avons pris comme volume d'interaction le volume nucléaire $V = (4/3)\pi r_0^3 A$ avec $r_0 = 1{,}3$ fermi. On a d'autre part :

$$T = E^* - B$$

E^* étant l'énergie d'excitation du noyau et B l'énergie de liaison totale relative à la désintégration considérée.

On remarquera que la barrière coulombienne n'intervient pas dans l'expression (7) du poids statistique ; mais il faut souligner qu'elle est faible pour les noyaux très légers et que d'autre part, comme nous le verrons, l'énergie d'excitation des noyaux résiduels est grande. La correction, dans ce cas est donc probablement négligeable.

En utilisant la formule (7), nous avons calculé les poids statistiques des voies de désintégration des noyaux résiduels suivants produits par la cascade : ^{13}N, ^{12}N, ^{10}N, ^{12}C, ^{11}C, ^{10}C, ^{9}C, ^{11}B, ^{10}B, ^{9}B, ^{8}B, ^{7}B, ^{10}Be, ^{9}Be, ^{8}Be, ^{7}Be, ^{9}Li, ^{8}Li, ^{7}Li, ^{6}Li, ^{6}He.

Ceux-ci peuvent conduire par des voies différentes aux noyaux finals qui nous intéressent : ^{11}C, ^{10}C, ^{11}B, ^{10}B, ^{10}Be, ^{9}Be, ^{7}Be, ^{9}Li, ^{8}Li, ^{7}Li, ^{6}Li, ^{6}He. Par exemple le noyau résiduel excité ^{12}C peut donner ^{6}Li par les voies suivantes :

$^{12}C \rightarrow {}^{6}Li + 3p + 3n$ $\quad$ $^{6}Li + {}^{3}He + p + 2n$.
$^{6}Li + d + 2p + 2n$ $\quad$ $^{6}Li + {}^{3}He + d + n$.
$^{6}Li + 2d + p + n$ $\quad$ $^{6}Li + {}^{3}He + t$.
$^{6}Li + 3d$ $\quad$ $^{6}Li + {}^{4}He + p + n$.
$^{6}Li + t + 2p + n$ $\quad$ $^{6}Li + {}^{4}He + d$.
$^{6}Li + t + d + p$ $\quad$ $^{6}Li + {}^{6}Li$.

Le nombre total de voies considérées est ainsi d'environ 1 000.

Nous avons négligé les voies telles que :

$$^{12}C \rightarrow {}^{6}Li + {}^{5}Li + n$$

ou :

$$^{12}C \rightarrow {}^{6}Li + {}^{5}He + p,$$

la durée de vie des isotopes de masse 5 étant de l'ordre de 10^{-21} sec. Nous avons également ignoré les noyaux résiduels ^{7}B, ^{9}C, ^{10}N et ^{11}N, leur masse étant inconnue, mais les tableaux XII et XIII montrent qu'ils sont produits en faible proportion.

Pour chaque voie issue d'un noyau résiduel donné, le poids statistique W de la relation (7) doit être calculé en donnant successivement à E^* les 15 valeurs extraites des spectres d'énergie d'excitation donnés par les figures 30 et 31.

Le poids statistique R_j relatif à chaque noyau final j est donc donné par :

$$R_j = \sum_{i=1}^{18} \sum_{k=1}^{n_i} \sum_{l=1}^{15} W(i, k, E_l^*) n_l$$

où i correspond à un noyau résiduel, k à une voie de désintégration, et l à des intervalles ΔE de 5 MeV du spectre d'énergie d'excitation (fig. 30 et 31) d'un noyau résiduel i, l'ordonnée des histogrammes (30) ou (31) étant n_l.

Chaque noyau final j peut être formé dans un état excité et nous avons calculé R_j pour tous les niveaux stables par rapport à l'émission de particules. En moyenne, le nombre de niveaux pour les noyaux considérés est de 3 ou 4 ce qui multiplie d'autant le nombre de voies calculées. Finalement, pour obtenir 12 valeurs de sections efficaces concernant un noyau cible bombardé par des particules d'une seule énergie, il a fallu calculer W environ 50 000 fois.

Les valeurs des masses sont prises dans la table de König, Wapstra et Mattauch (K.5), celles des spins et niveaux dans *Nuclear Data Sheets* 1961 (W.5), James *et al.* (J.4) et Alburger (A.3). Aux niveaux dont le spin n'est pas connu, nous avons attribué celui des niveaux correspondants des noyaux miroirs. Par exemple au niveau de 3,34 MeV de ^{10}C nous avons associé la valeur $I = 2$.

Calcul des sections efficaces. — Si l'on connaît la probabilité P_j de formation du noyau j par proton

incident sur ^{12}C on en déduit la section efficace σ_j correspondante :

$$\sigma_j = P_j \sigma_g,$$

où σ_g est la section efficace géométrique de C_{12}, égale à 300 mb.

La méthode que nous venons d'exposer ne permet toutefois pas de calculer les probabilités absolues. Il faudrait en effet pour les obtenir, calculer la somme des poids statistiques de toutes les voies possibles de désintégration des 18 noyaux résiduels considérés. La probabilité de produire le noyau j serait :

$$P_j = R_j \Big/ \sum_{p=1}^{t} R_p$$

où t est le nombre total des voies possibles.

Mais en raison de l'insuffisance de données expérimentales ΣR_p reste inconnu. Nous avons donc calculé toutes les sections efficaces en prenant comme référence celle de ^7Be qui est bien déterminée expérimentalement (C.2).

Une fraction des noyaux résiduels d'espèce j produits par la cascade possèdent une énergie d'excitation trop faible pour que ceux-ci se désintègrent par émission de particules. Soit f_j cette fraction, qui est donnée par les histogrammes (30) ou (31).

Si l'on désigne par R_7, σ_7, f_7, P_7 les symboles précédemment définis correspondant à ^7Be on peut écrire :

$$\frac{R_7}{\Sigma R_p} + f_7 = P_7$$

et :

$$\sigma_7 = P_7 \sigma_g.$$

De même pour le noyau j :

$$\frac{R_j}{\Sigma R_p} + f_j = P_j$$

et :

$$\sigma_j = P_j \sigma_g.$$

En éliminant ΣR_p, on obtient σ_j en fonction des grandeurs connues ou calculées σ_7, σ_g, R_7, f_j, f_7, R_j :

$$\sigma_j = \frac{R_j \sigma_7}{R_7} + \left(f_j - \frac{R_j f_7}{R_7} \right) \sigma_g$$

D. — Résultats

En appliquant la méthode décrite ci-dessus nous avons calculé les sections efficaces de production des noyaux qui figurent dans le tableau XIV et ceci pour les deux cas $P = 0{,}40$ et $P = 0$. Si l'on excepte ^9Li et les trois noyaux stables ^9Be, ^{10}B, ^{11}B tous les autres ont donné lieu à des mesures expérimentales par différents groupes d'expérimentateurs dont les résultats figurent dans la colonne 3 du tableau et peuvent être comparés aux valeurs calculées des colonnes 2 et 4.

Les remarques suivantes correspondent aux chiffres du tableau XIV indiqués entre parenthèses :

(1) Dans la colonne 2 les lettres *a* et *b* se réfèrent aux résultats obtenus par deux séries indépendantes de 10 000 cascades chacune. Les distributions que nous avons données dans le tableau XIII et la figure 31 ont été utilisées pour calculer les valeurs de la colonne *b*.

(2) Valeurs indiquées par Cumming (C.2) à 156 MeV.

(3) Valeur mesurée par Honda et Lal à 220 MeV (H.5).

(4) Valeur mesurée par Klapisch à 156 MeV compte tenu des sections efficaces de ^7Li et ^6Li données par nos mesures.

Par ailleurs Wright (W.6) donne $0{,}7 \pm 0{,}2$ pour des protons de 340 MeV et Titterton (T.3) $0{,}6 \pm 0{,}2$ mb pour des neutrons de 156 MeV.

(5) Valeurs mesurées au cours du présent travail (150 MeV).

(6) La valeur de $\sigma(^6He)$ à 156 MeV a été discutée au chapitre II. Pour 1 GeV et 3 GeV Rowland et Wolfgang (R.7) obtiennent 0,5 et 0,6 mb.

(7) Nous n'avons pas séparé ^6Li de ^6He en raison de la courte période (0,8 sec) de celui-ci.

(8) Section efficace mesurée par Valentin *et al.* (V.2).

(9) Ces sections efficaces ne sont pas encore mesurées expérimentalement. La limite actuelle de détection de ces éléments par spectrométrie de masse n'est encore que de 10^{-9} g. Nous les avons cependant calculées pour l'intérêt qu'elles présentent en astrophysique et nucléosynthèse.

(10) La section efficace de ^9Li est en cours de détermination au laboratoire.

(11) Dans la colonne correspondant à $P = 0$, nous avons indiqué deux valeurs calculées : 0,080 mb est la valeur obtenue par la désintégration des autres noyaux résiduels, d'après le modèle de Fermi. Mais il faut tenir compte en plus de cela du fait que parmi les 27 noyaux résiduels de ^9Li résultants des cascades $(p, 4p)$, il s'en trouve un dont l'énergie d'excitation est comprise entre 0 et 5 MeV. Les données expérimentales concernant les niveaux de ^9Li faisant défaut, nous pouvons supposer qu'un ^9Li peu excité ne se désexcitera pas par émission de particule et nous devons tenir compte de ce noyau pour le calcul de la section efficace de production de ^9Li. Un cas sur 10 000 cascades représente 300 mb/10 000 = 0,030 mb. Ceci conduit à la valeur de 0,110 mb indiquée. Mais ce calcul est insuffisant pour aboutir à une conclusion certaine. Afin d'obtenir une statistique meilleure il faudrait calculer environ 100 000 cascades.

Discussion et interprétation des résultats. — Le tableau XIV indique un accord général très satisfaisant avec l'expérience. Cependant le calcul conduit à une valeur de $\sigma(^{11}C)$ très différente de la valeur expérimentale. Nous retrouvons ici encore le désaccord déjà

souligné pour les réactions (p, pn). Dans le cas de $^{12}C(p, pn)^{11}C$ il s'agit probablement d'une réaction périphérique et notre modèle simple ne peut en rendre compte.

Si l'on exclut cette réaction particulière, on peut donc espérer que le modèle statistique de Fermi associé aux calculs de Monte-Carlo et appliqué à d'autres cibles et pour des énergies égales ou supérieures puisse donner des résultats intéressants. Il convient de souligner ici, comme il apparaît dans le tableau XIV, que l'accord n'est amélioré que dans une faible mesure par l'introduction de l'hypothèse d'une diffusion nucléon-alpha dans la cascade intra-nucléaire.

TABLEAU XIV

$^{12}C + p_{156\ MeV}$

Noyau final	σ calculé P = 0,4 (mb)		σ expérimental (mb)	σ calculé P = 0 (mb)
^{7}Be référence	12,1		12,1 ± 10 % (2)	12,1
	a	*b* (1)		
^{10}Be	1,3	1,1	1,8 ± 0,6 (3)	1,6
^{9}Li	0,07	0,04	(10)	0,08 ou 0,11 (11)
^{8}Li	1,1	0,8	0,6 ± 0,2 (4)	1,2
^{7}Li	8,6	6,8	7,8 ± 1,6 (5)	7,8
^{6}Li	9,9	9,4	(7)	12,6
^{6}He	0,7	0,5	⩽ 0,5 (6)	0,8
$^{6}Li + {}^{6}He$	10,6	9,9	9,8 ± 1,8 (7)	13,4
$^{7}Li + {}^{7}Be$	20,7	18,9	19,9 ± 4,0 (5)	19,9
$R = \sigma_7/\sigma_6$	1,95	1,91	2,0 ± 0,1	1,5
^{10}C	1,1	0,9	2,6 ± 0,3 (8)	0,8
^{11}C	8,0	7,1	45 ± 2 (2)	13,3
^{9}Be	1,6	1,4	(9)	1,3
^{10}B	15,8	14,3	(9)	12,9
^{11}B	8,5	9,7	(9)	17,8

Pour les énergies inférieures à une centaine de MeV, la validité de la cascade peut être mise en cause comme on l'a vu plus haut. Nous avons effectué, à titre d'essai, le calcul des sections efficaces pour des protons de 50 MeV et obtenus les valeurs suivantes :

$$\sigma(^{6}Li) = 13\ mb \qquad \sigma(^{7}Li) = 3\ mb,$$

en prenant comme référence $\sigma(^{7}Be) = 25$ mb, alors que les valeurs expérimentales (voir tableau VII) sont $\sigma(^{6}Li) = 9$ mb et $\sigma(^{7}Li) = 7$ mb ce qui confirme bien l'inapplicabilité de ce modèle à cette énergie.

Aux énergies encore plus faibles on pourrait espérer obtenir des résultats valables en calculant par une méthode appropriée la section efficace de formation de noyau composé et il serait alors possible d'appliquer le modèle de Fermi pour calculer la désintégration de ce noyau.

Dans leur ensemble les résultats obtenus par ce calcul renforcent l'hypothèse du processus en deux étapes qui n'est cependant pas à l'abri de nombreuses critiques.

Depuis qu'en 1956 Wolfgang *et al.* (W.4) ont suggéré qu'un nouveau processus appelé fragmentation puisse expliquer la production de fragments, de très nombreuses expériences ont été réalisées en vue de faire apparaître ce processus et des modèles divers ont été élaborés.

La fragmentation, telle que l'a définie Wolfgang, contrairement à la spallation, ne procèderait pas en deux étapes. Ces auteurs (W.4) considèrent qu'un échauffement local du noyau dû à la création et à l'absorption de mésons, provoquerait l'émission d'un fragment.

A la suite de Munir (M.10) qui associe dès 1956 la production de fragments à la cascade intranucléaire, Lojkin (L.5), Perfilov (P.3), Balachov (B.6) envisagent l'expulsion de sous-structures par interaction directe, Denisov (D.5) propose la rupture par la cascade de la liaison des sous-structures avec le reste du noyau.

Aucune expérience n'est venue jusqu'à présent confirmer ou infirmer ces hypothèses de façon décisive.

L'examen de certaines particularités de la production de fragments ne permet cependant pas d'écarter définitivement le modèle en deux étapes : il est par exemple intéressant de comparer les figures 32 et 33 qui représentent respectivement les fonctions d'excitation relatives à divers noyaux cibles et la variation de l'énergie d'excitation moyenne en fonction de l'énergie incidente.

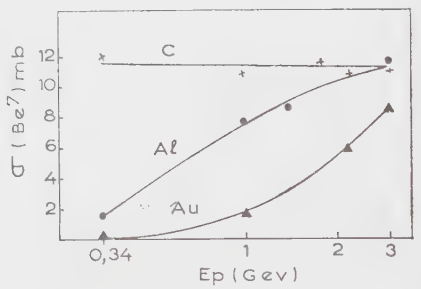


FIG. 32. — *D'après* (B.12). *Variation de la section efficace de production de* ^{7}Be *en fonction de l'énergie des protons incidents pour les cibles* C, Al, Au.

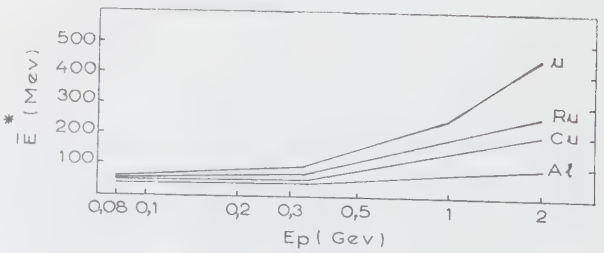


FIG. 33. — *D'après* (M.6). *Variation de l'énergie moyenne d'excitation des noyaux résiduels, en fonction de l'énergie des protons incidents pour les cibles* Al, Cu, Ru, U.

La section efficace de production de ^{7}Be ne devient importante dans Au que pour une énergie incidente qui correspond à une grande énergie d'excitation moyenne.

L'énergie d'excitation moyenne pour Al varie très peu. Pour C elle varie certainement encore moins. Or la section efficace $\sigma(^{7}Be)$ est de même constante pour C. Il semble donc que l'on puisse faire un rapprochement entre la valeur de la section efficace et celle de l'énergie d'excitation moyenne, ce qui implique un processus en deux étapes.

D'autre part les calculs de Hudis et Miller (H.4) sur l'évaporation de ^{7}Be sont en très bon accord avec l'expérience pour toutes les énergies.

Il en est de même pour les calculs d'évaporation de ^{6}He, ^{7}Be, ^{8}Li, par Dostrovsky, Fraenkel et Rabinowitz (D.2) et de ^{13}N par Dostrovsky, Fraenkel et Hudis (D.6).

Nos calculs donnent également un bon accord à 156 MeV pour la production de ^{6}He, ^{8}Li, ^{6}Li, ^{7}Li, ^{10}Be dans le carbone.

Les spectres d'énergie des fragments calculés d'après le modèle de l'évaporation par des auteurs comme Nakagawa (N.4), Munir (M.10) ou Skeggestad (S.6) se superposent bien aux spectres expérimentaux. La température nucléaire calculée correspond toutefois à une énergie d'excitation très élevée (S.6) et la traînée aux grandes énergies n'est pas expliquée.

Quant aux distributions angulaires, si l'on observe une émission de ^{8}Li par le carbone vers l'avant environ deux fois plus grande que vers l'arrière dans le système du laboratoire (M.10) (K.6), Munir (M.10) fait remarquer que cela correspond à une émission isotrope dans le système du centre de gravité.

C'est également la conclusion de Nakagawa (N.4) pour les noyaux lourds.

Cumming *et al.* (C.4) en étudiant l'émission de ^{24}Na par une cible de bismuth concluent à l'impossibilité d'un processus en deux étapes, car l'énergie d'excitation devrait avoir une valeur telle que la durée de vie du noyau excité serait de l'ordre du temps de transit du nucléon incident dans le noyau.

Mais on peut alors supposer, et notre conclusion rejoint celle de Goritchev *et al.* (G.9) dans leur étude sur l'émission simultanée de plusieurs fragments, que la deuxième étape n'est pas nécessairement une évaporation lente, mais une rupture rapide si l'énergie d'excitation est de l'ordre de l'énergie totale de liaison. C'est le modèle statistique que nous avons utilisé pour les noyaux légers. Il n'est pas impossible d'envisager de l'appliquer aux noyaux plus lourds malgré les difficultés du calcul. Une extension à ^{16}O est d'ores et déjà en cours.

Ce modèle, analogue à celui de l'évaporation par son caractère statistique, s'en distingue par l'aspect rapide de la deuxième étape. La contradiction introduite aux grandes énergies d'excitation par la redistribution successive de l'énergie et soulignée par Miller et Hudis (M.9) est ici levée.

TROISIÈME PARTIE

CHAPITRE IV

NUCLÉOGENÈSE DES ÉLÉMENTS LÉGERS DANS LES PLANÈTES DU SYSTÈME SOLAIRE

A. — Introduction

En examinant la courbe de la figure 34 représentant l'abondance des éléments dans le système solaire et certaines étoiles on remarque immédiatement que les trois éléments Li, Be, B se distinguent de leurs voisins par leur extrême rareté. En effet leur abondance est environ 10^{7} à 10^{9} fois plus faible que celle des autres éléments légers (hélium, carbone, azote, oxygène).

Les diverses théories traitant de la synthèse des éléments, comme celles de Alpher et Herman (A.4), Cameron (C.8), ou Burbidge, Burbidge Fowler et Hoyle (B.7) (*) parviennent à rendre compte, et la dernière avec un succès particulier, de l'abondance de la plupart des éléments. Cependant, le groupe Li, Be, B ne pouvait être expliqué par des processus comme la chaîne proton-proton, ou le cycle du carbone, envisagés pour les autres éléments. De plus, en supposant même qu'ils aient pu être formés, Li, Be, B auraient été aussitôt détruits par les réactions thermonucléaires favorisées par les températures régnant à l'intérieur des étoiles.

Après l'observation d'une quantité anormalement élevée de lithium à la surface des étoiles T Tauri, B_2FH ont suggéré que les noyaux de Li, Be, B pourraient être produits par la spallation des noyaux les plus proches et les plus abondants (C, N, O).

(*) Dans ce qui suit ces auteurs seront désignés, suivant la coutume, par B^2FH.

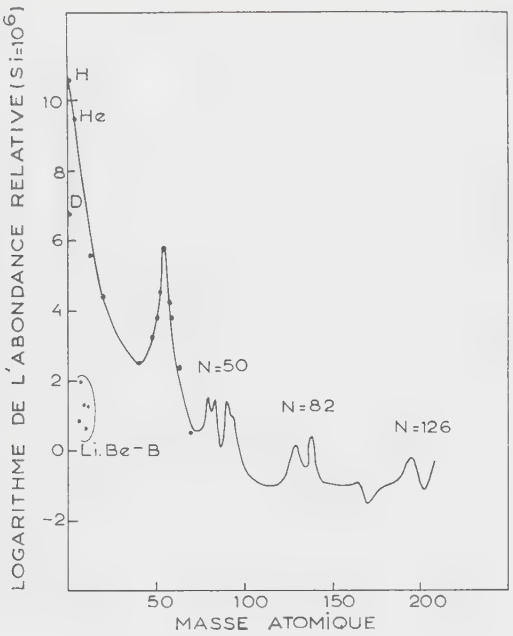


FIG. 34. — *Abondances des éléments d'après* (S.10).

B. — Formation de LiBeB dans les planètes et les météorites du système solaire

Se basant sur le fait que l'abondance du lithium est environ 100 fois plus grande sur la Terre qu'à la surface du soleil, Fowler, Greenstein et Hoyle (F.4) (*) ont repris l'hypothèse de la spallation pour expliquer la présence de ces éléments sur la Terre et les météorites. Selon leur théorie, la matière du disque équatorial, qui devait ensuite constituer les planètes par agglomération, aurait été irradiée par les protons solaires, produisant ainsi Li, Be, B par spallation. Les abondances isotopiques de ces éléments posent alors un nouveau problème : comment les rapports $^{7}Li/^{6}Li$ et $^{11}B/^{10}B$ supposés *a priori* être voisins de 1 au moment de la spallation ont-ils évolué pour atteindre les valeurs terrestres et météoritiques de 12 et 4 respectivement. Pour résoudre cette question, F G H supposent que les neutrons produits par la spallation elle-même sont ralentis et capturés par ^{6}Li et ^{10}B qui possèdent précisément de très grandes sections efficaces de réaction (n, α).

De plus, F G H, utilisent quelques hypothèses supplémentaires concernant le flux de protons, le spectre d'énergie de ces protons et la composition de la matière irradiée, qui devait être, au moment de l'irradiation, composée d'environ 75 p. 100 d'oxygène et 25 p. 100 de silicium.

En réunissant toutes ces hypothèses ils construisent un système cohérent qui rend compte, outre des abondances terrestres de Li, Be, B, de celle du deutérium.

Toutefois, afin d'expliquer que le ^{157}Gd ait pu subsister malgré la présence de neutrons thermiques, ces auteurs ont dû admettre que toute la matière planétaire n'a pas été irradiée par le flux de protons et de neutrons.

Cela les a conduits à attribuer aux objets planétaires de cette époque des dimensions de l'ordre de 10 à 50 m. Mitler (M.11) dans un développement récent plus élaboré de la théorie de F G H déduit que le diamètre de ces microplanètes devait être voisin de 30 m et cette condition est également nécessaire pour rendre compte de l'abondance du deutérium sur la Terre.

Dans leur modèle, F G H prennent comme point de départ les abondances des isotopes de Li, Be, B observés dans la nature et de plus l'hypothèse selon laquelle ^{6}Li et ^{7}Li seraient produits par spallation en quantités égales. Leurs calculs les conduisent alors à déduire des taux de production des isotopes ^{6}Li, ^{7}Li, ^{9}Be, ^{10}B, ^{11}B ayant des valeurs relatives bien déterminées. Nous les avons indiquées dans le tableau XV, ligne 1.

TABLEAU XV

	^{6}Li	^{7}Li	^{9}Be	^{10}B	^{11}B
F G H	1,4	1,4	1	3,3	1
E G (^{12}C)	6,6	13,3	1	12	39

E G Ce travail.
F G H Référence (F.4).

Nous présentons dans le même tableau les valeurs que nous avons obtenues expérimentalement (^{6}Li et ^{7}Li) et par le calcul (^{6}Li, ^{7}Li, ^{9}Be, ^{10}Be, ^{11}B) toutes les valeurs y compris celles de F G H ont été normalisées relativement à ^{9}Be.

Afin de compléter la comparaison nous avons dressé les tableaux XVI et XVII correspondant respectivement aux abondances des 5 isotopes concernés et à leurs rapports. Les deux premières lignes représentent les données relatives aux météorites obtenues par Shima (S.7) (S.8), Sill et Willis (S.9), Krankovsky et Müller (K.7), et celles indiquées par Suess et Urey (S.10) pour la Terre.

Chaque colonne représente la production cumulative de l'isotope correspondant, c'est-à-dire, respectivement $^{6}Li + ^{6}He$, $^{7}Li + ^{7}Be$, ^{9}Be, $^{10}B + ^{10}Be + ^{10}C$, $^{11}B + ^{11}C$.

(*) Ces auteurs seront désignés par F G H.

TABLEAU XVI

	^{6}Li	^{7}Li	^{9}Be	^{10}B	^{11}B
Météorites (*)	3	36	1	1,6	6,1
Terre (**)	0,37	4,6	1	0,22	1
E G (^{12}C)	6,6	13,3	1	12	39
E G (^{16}O) (***)	7	14	1	10	20
F G H	1,4	1,4	1	3,3	1

(*) Références (S.8) et (K.7).
(**) Référence (S.10).
(***) Pour ^{16}O les valeurs relatives ont été extrapolées sauf pour ^{6}Li et ^{7}Li qui ont été déterminés expérimentalement. Le calcul en cours sur ^{16}O et la mesure de σ(B) et de σ(Be) par spectrométrie de masse permettront d'éprouver la validité de nos hypothèses.

Nous utilisons les valeurs expérimentales quand elles sont connues ; ainsi ^{11}C contribue pour une grande part ($\sigma(^{11}C) = 45$ mb) à la production de ^{11}B.

TABLEAU XVII

	$^{7}Li/^{6}Li$	Be/Li	$^{11}B/^{10}B$	B/Li	$^{10}B/^{7}Li$	$^{11}B/^{9}Be$
Météorites (*)	12	0,03	4	0,21	0,05	6
Terre (**)	12	0,2	4	0,24	0,05	1
E G (^{12}C)	2	0,05	3,2	2,5	0,9	39
E G (^{16}O) (***)	2	0,05	2	1,5	0,7	20
F G H	1	0,36	0,28	1,6	2,5	1

(*) Références (S.8) et (K.7).
(**) Référence (S.10).
(***) Pour ^{16}O les valeurs relatives ont été extrapolées sauf pour ^{6}Li et ^{7}Li qui ont été déterminés expérimentalement. Le calcul en cours sur ^{16}O et la mesure de σ(B) et de σ(Be) par spectrométrie de masse permettront d'éprouver la validité de nos hypothèses.

En comparant dans ces tableaux les valeurs déduites par F G H d'après leur modèle, avec nos résultats, on est amené à se demander si un autre modèle ne rendrait pas mieux compte du passage des conditions initiales aux conditions finales.

En effet, les déductions de F G H sont très éloignées des valeurs que nous avons obtenues, et plus spécialement le rapport $^{11}B/^{10}B$, qui constitue précisément un élément essentiel de la théorie de ces auteurs.

Discussion

De l'examen du tableau XVII il ressort que l'on doit expliquer le passage des valeurs de spallation (3e et 4e lignes) aux valeurs naturelles observées dans les météorites et sur la Terre (lignes 1 et 2).

La démarche inverse de F G H les a conduits à l'adoption des valeurs de spallation de la ligne 5.

Nous discuterons chaque colonne successivement.

1° **$^{7}Li/^{6}Li$.** — Pour expliquer le rapport terrestre $^{7}Li/^{6}Li = 12$, F G H ont envisagé la destruction de ^{6}Li par les neutrons produits au cours de la spallation. En effet, la section efficace de la réaction ^{6}Li (n, α) ^{3}H est de 945 barns. Or il existe d'autres régions de l'univers où l'on peut observer des valeurs de $^{7}Li/^{6}Li$ atteignant ou dépassant la valeur terrestre, sans que les neutrons puissent être mis en cause.

En effet, tout récemment, Herbig (H.6), Wallerstein (W.7) ont mesuré par spectroscopie les variations de $^{7}Li/^{6}Li$ à la surface de plusieurs étoiles et trouvent les valeurs indiquées par le tableau XVIII.

TABLEAU XVIII

Auteurs	Type de l'étoile	$^{7}Li/^{6}Li$	Type de l'étoile	$^{7}Li/Li^{6}$
Wallerstein (W.7)	A5	1,8	G5	4,3
	Fo	2	G5	4,5
	F2	7,3	F2	13
	Go	2,2	F8	très grand
Herbig (H.6)	F5	2,2	Go	3,1
	F6	25	Go	2,5
	F7	5	Go	2
	F8	1,8	Go	20
	F9	30	Go	4
			G5	2,5

La formation de lithium y est attribuée aux réactions de spallation, puisque, comme nous l'avons déjà mentionné aucune autre ne peut produire ^{6}Li qui est contourné par la chaîne proton-proton.

On admet alors, et nos résultats le confirment que ^{7}Li et ^{6}Li sont produits en quantités à peu près égales. Les grandes valeurs de $^{7}Li/^{6}Li$ sont dues aux courants de convection existant à la surface des étoiles. Le lithium étant entraîné dans les couches plus profondes de l'étoile, ^{6}Li est détruit beaucoup plus vite que ^{7}Li par les réactions thermonucléaires (p, α). En effet :

$$\frac{\sigma[^{6}Li(p, \alpha)]}{\sigma[^{7}Li(p, \alpha)]} \simeq 100 \text{ à } T = 1.10^{6} \text{ à } 6.10^{6} \text{ °K.}$$

On observe donc des rapports $^{7}Li/^{6}Li \simeq 12$ comme dans 45 Tau (Wallerstein).

Si l'on admet avec Gold (G.10) que la matière planétaire peut avoir appartenu à la surface du soleil, on peut alors penser que le rapport $^{7}Li/^{6}Li = 12$ observable sur la Terre et dans les météorites est la valeur qu'il avait au moment de la séparation (*). Cette

(*) En conclusion d'un article de 1961, Bashkin et Peaslee (B.11) font remarquer que les éléments légers pourraient avoir été produits par spallation dans une région devant ensuite constituer la zone convective du soleil. Toutefois, en l'absence de données expérimentales, ces auteurs attribuent la valeur 12 au rapport de spallation $^{7}Li/^{6}Li$.

hypothèse est soutenue par les observations de Bonsack et Greenstein (B.8) et Bonsack (B.9) sur les étoiles T Tauri. Ces étoiles très jeunes sont encore en leur stade de contraction et présentent une abondance Li/métal 100 fois plus grande que celle du soleil actuel mais égale à celle de la Terre.

Weyman et Moore (W.8) montrent justement que les étoiles en contraction dont la masse est proche de celle du soleil détruisent leur ^{6}Li (T à la base de la zone de convection = 2.10^6 K). La matière des planètes se serait donc séparée à une période où le Soleil était une étoile jeune et où le rapport ^{7}Li/^{6}Li était voisin de 12. Si des mesures étaient effectuées, on devrait donc observer à la surface du soleil, compte tenu du très faible taux de production actuel de lithium, des rapports égaux ou supérieurs à 12.

2° **Be/Li.** — Le rapport Be/Li que nous avons calculé est de 0,05 alors qu'on trouve $0,03 \pm 0,01$ dans les météorites (S.9). Cette valeur ne s'oppose pas à l'hypothèse formulée au point précédent si l'on admet comme Bonsack (B.10) que l'abondance de Be dans les T Tauri est celle du système solaire (des planètes).

Le soleil ayant brûlé et dilué son lithium, il n'est pas anormal de trouver actuellement à sa surface : Be/Li = 25, c'est-à-dire environ 100 fois la valeur terrestre.

Notons qu'en détruisant ^{6}Li par (p, α) jusqu'à ce que ^{7}Li/^{6}Li = 12, on trouve Be/Li = 0,07, ce qui est encore compatible avec la valeur terrestre de 0,03-0,04.

3° **B/Li et ^{11}B/B^{10}.** — En ce qui concerne les étoiles il faut noter qu'aucune détermination spectroscopique de l'abondance du bore n'a encore été effectuée en raison de la difficulté des mesures.

D'autre part le rapport B/Li terrestre et météoritique est mal connu : en effet les valeurs mesurées sont comprises entre 0,03 et 0,3. Cela est probablement dû à l'extrême volatilité des composés de bore. Une partie de celui-ci peut s'être volatilisée, par exemple avant la solidification des roches ignées, où précisément on trouve 0,03 (F.4).

Ceci étant, et en admettant que la valeur 0,3 représente le rapport terrestre et météoritique on remarque dans le tableau XVII que le rapport B/Li produit par spallation est très supérieur à cette valeur.

Le tableau XVII indique de même que le rapport B/Be de spallation est très grand par rapport à celui de la Terre et des météorites.

On peut donc se demander, en reprenant l'hypothèse de Gold déjà mentionnée, ce qu'est devenue une grande partie du bore.

Une certaine quantité aurait pu être détruite par la réaction $B(p, \alpha)$, à la base de la zone de convection, avant la séparation, mais la section efficace de cette réaction est beaucoup plus petite que celle de $Li(p, \alpha)$ et cette supposition ne peut rendre compte du rapport B/Li terrestre.

L'hypothèse suivante expliquerait mieux la faible abondance du bore : nous admettrons avec F G H que les planètes se sont formées par accrétion, en commençant par les éléments les moins volatils, les gaz, attirés par les planètes plus massives, se séparant des solides terrestres. De plus, la terre s'est constituée dans une région assez proche du soleil pour que sa température soit plus élevée que celle d'autres planètes.

Enfin, Aller (A.5) dans son ouvrage sur l'abondance des éléments rappelle la conclusion à laquelle aboutit Urey (U.1) en ce qui concerne les météorites : d'après cet auteur, celles-ci n'ont pu conserver sans perte importante que les seuls éléments formant des composés stables non volatils à une température voisine de 0° C.

Urey (U.2) dans une étude sur l'origine du système solaire a fait également remarquer que la séparation des gaz a dû se produire avant que la matière terrestre ait été concentrée jusqu'à son volume actuel.

Il ne nous paraît donc pas impossible d'admettre dans ces conditions qu'une fraction importante du bore, dont les composés sont beaucoup plus volatils que ceux du lithium et du béryllium comme l'indique le tableau XIX, a pu être entraînée vers les planètes plus lourdes et plus froides (Jupiter, Uranus) ainsi que

TABLEAU XIX

Tensions de vapeur de certains composés de lithium, bore et béryllium (Extrait de Handbook of Chemistry and Physics, 44e édition).

(t° C)

Composé	1 mm	10 mm	40 mm	100 mm	400 mm	760 mm
CH_3BO	— 139	— 121	— 106	— 95	— 74	— 64
$C_2H_{10}B_2$	— 106	— 82	— 62	— 47	— 18	— 26
$C_3H_{12}B_2$	— 74	— 44	— 22	— 4	+ 27	+ 45
$C_4H_{14}B_2$	— 60	— 27	— 3	+ 15	+ 50	+ 68
AlB_3H_{12}		— 43	— 21	— 4	+ 28	46
BH_3CO	— 139	— 121	— 106	— 95	— 75	— 64
BBr_6	— 41	— 10	+ 14	33	70	92
BCl_3	— 91	— 67	— 48	— 32	— 4	+ 12
BF_2	— 154	— 141	— 131	— 123	— 108	— 110
B_2H_6	— 159	— 144	— 131	— 120	— 99	— 86
B_2BrH_5	— 93	— 66	— 45	— 29	0	16
$B_6H_3N_3$	— 63	— 35	— 13	4	34	50
B_4H_{10}	— 91	— 64	— 44	— 28,1	0,8	16
B_5H_9		— 30	— 8	10	40	58
B_5H_{11}	— 50	— 20	3	20	51	67
$B_{10}H_{14}$	+ 60	90	117	142		
$BeBr_2$	289	342	379	405	451	474
$BeCl_2$	291	346	384	411	461	487
BeI_2	283					487
Li	723	881	1 003	1 097	1 273	1 372
Li Br	748	888	994	1 076	1 226	1 310
Li Cl	783	932	1 045	1 129	1 290	1 382
Li F	1 047	1 211	1 333	1 425	1 591	1 681
Li I	723	841	927	993	1 110	1 171

l'ont été par exemple le méthane, le néon ou l'ammoniac.

Il faut que ce processus ait éliminé environ 90 p. 100 du bore, pour que l'on retrouve les valeurs terrestres et météoritiques de B/Li, $^{10}B/^{7}Li$ et $^{11}B/^{9}Be$ du tableau XVII. En effet, $^{11}B/Be$ passe alors de la valeur moyenne 30 à la valeur 3, comprise entre celles de lignes 1 et 2 du tableau XVII. De même $^{10}B/^{7}Li$, qui est de 0,8 initialement prend la valeur 0,08 compatible avec 0,05 et B/Li, de 2,5 passe à 0,25 valeur naturelle observée.

En résumé, nous proposons le schéma suivant, sensiblement différent de celui de F, G, H :

1° Les réactions de spallation ayant eu lieu à la surface du soleil pendant sa période d'activité ont produit les isotopes de Li, Be, B dans les proportions indiquées dans le tableau XVII, lignes 3 et 4.

2° La matière planétaire ne s'est séparée de la surface du soleil qu'après avoir subi les effets de la zone convective (hypothèse de Gold). Les abondances isotopiques observées actuellement sur la Terre et dans les météorites représentent ce qu'elles étaient pendant cette période de séparation.

3° Une grande partie du bore a été entraînée vers les planètes plus lourdes et plus froides que la Terre, de même que le méthane, l'ammoniac ou les gaz rares.

4° Les étapes ultérieures de la formation des planètes massives ne sont pas perturbées par ces hypothèses. Notamment, une irradiation postérieure à la séparation de la matière planétaire et conforme à l'hypothèse de F G H compléterait le processus que nous proposons.

CONCLUSION

En perfectionnant la technique et les méthodes d'utilisation de la spectrométrie de masse, nous avons pu déterminer, pour des protons dont l'énergie varie de 44 à 550 MeV, les sections efficaces des réactions suivantes, conduisant à la production d'isotopes stables :

$$\left.\begin{matrix}^{12}C \\ ^{16}O\end{matrix}\right\} + p \rightarrow {}^{6}Li, {}^{7}Li.$$

Nous avons interprété les résultats concernant C_{12} en nous basant sur le modèle en deux étapes de Serber. Dans la première étape, nous avons calculé les cascades intranucléaires, d'après le modèle de Goldberger, par la méthode de Monte-Carlo, en incluant la possibilité de diffusion élastique des nucléons sur des sous-structures alpha, à l'intérieur du noyau.

Pour la deuxième étape, nous avons traité le problème de la désexcitation des noyaux résiduels par un processus différent de celui de l'évaporation généralement appliqué aux noyaux lourds.

L'accord entre les valeurs calculées des sections efficaces des réactions aboutissant à ^{6}He, ^{6}Li, ^{7}Li, ^{8}Li, ^{10}Be avec les valeurs expérimentales est très satisfaisant. Il semble qu'on doive donc concevoir la 2e étape sous une forme nouvelle, sans toutefois que cela implique l'abandon du modèle de Serber.

Les résultats précédents concernant les taux de production de ^{6}Li, ^{7}Li, ^{9}Be, ^{10}B, ^{11}B ont permis de réexaminer les théories actuelles sur la nucléosynthèse des éléments légers lors de la formation du système solaire. Sur la base de ces nouvelles données nous avons proposé un schéma différent de celui de Fowler, Greenstein et Hoyle.

BIBLIOGRAPHIE

A. 1. ALBOUY (G.), COHEN (J. P.), GUSAKOW (M.), POFFE (N.), SERGOLLE (H.) et VALENTIN (L.). — *Physics Letters*, 1962, **2**, 306.

A. 2. ABATE (E.), BELLINI (G.), FIORINI (E.) et RATTI (S.). — *Nuovo Cimento*, 1961, **22**, 1206.

A. 3. ALBURGER (D. E.). — *Phys. Rev.*, 1963, **132**, 328.

A. 4. ALPHER (R. A.) and HERMAN (R. C.). — *Rev. Mod. Phys.*, 1950, **22**, 153.

A. 5. ALLER (L. H.). — *The Abundance of the Elements*. Interscience Publishers, 1961.

B. 1. BRUNEE (C.) und VOSHAGE (H.). — *Massenspektrometrie*. Karl Thiemig, München, 1964.

B. 2. BAINBRIDGE (K. T.) et NIER (A. O.). — National Research Council. Preliminary report n° 9, 1950.

B. 3. BRUN (C.), LEFORT (M.) et TARRAGO (X.). — *J. Phys. Rad.*, 1962, **23**, 371.

B. 4. BERNARDINI (G.), BOOTH (E. T.) and LINDENBAUM (S. J.). — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 1017.

B. 5. BERTINI (H. W.). — *Phys. Rev.*, 1963, **131**, 1801.

B. 6. BALACHOV (V. V.), BOYARKINA (A. N.) et ROTTER (I.). — *Théorie de la fragmentation*. J. I. N. R., Doubna. Rapport n° 1357, 1963.

B. 7. BURBIDGE (E. M.), BURBIDGE (G. R.), FOWLER (A. W.) and HOYLE (F.). — *Rev. Mod. Phys.*, 1957, **29**, 547.
B. 8. BONSACK (W. K.) and GREENSTEIN (J. L.). — *Astrophys. J.*, 1960, **131**, 83.
B. 9. BONSACK (W. K.). — *Astrophys. J.*, 1961, **133**, 340.
B. 10. BONSACK (W. K.). — *Astrophys. J.*, 1961, **133**, 351.
B. 11. BASHKIN (S.) and PEASLEE (D. C.). — *Astrophys. J.*, 1961, **134**, 981.
B. 12. BAKER (E.), FRIEDLANDER (G.) and HUDIS (J.). — *Phys. Rev.*, 1958, **112**, 1319.
C. 1. COLLINS (T. L.) and MCHUGH (J. A.). — *Advance in Mass spectrometry*. Vol. III. Pergamon *(sous presse)*.
C. 2. CUMMING (J. B.). — *Ann. Rev. Nucl. Sc.*, 1963, **13**, 261.
C. 3. CRESPO (V. P.), ALEXANDER (J. M.) and HYDE (E. K.). — *Phys. Rev.*, 1963, **131**, 1765.
C. 4. CUMMING (J. B.), CROSS (R. J.), HUDIS (J.) et POSKANZER (A. M.). — *Phys. Rev.*, 1964, **134** B, 167.
C. 5. COMBE (J.). — *Nuovo Cimento*, 1956, **3**, S 182 (Supplemento).
C. 6. CÜER (P.) et COMBE (J.). — *Compt. Rend.*, 1955, **240**, 1527.
C. 7. CORMACK (A. M.), PALMIERI (J. N.), RAMSEY (N. F.) and WILSON (R.). — *Phys. Rev.*, 1959, **115**, 599.
C. 8. CAMERON (A. G. W.). — *Astrophys. J.*, 1955, **121**, 144 et 1959, **130**, 429.
D. 1. DOBRETZOV (N.). — *Emission électronique et ionique*. Editions techniques. Moscou 1950.
D. 2. DOSTROVSKY (I.), FRAENKEL (Z.) and RABINOWITZ (P.). — *Phys. Rev.*, 1960, **118**, 791.
D. 3. DA SILVEIRA. — Thèse Orsay, 1965.
D. 5. DENISOV (F. P.), KUZMIN (E. W.) et ORATOVSKI (W. A.). — International symposium on direct interaction, Padova, 1962.
D. 6. DOSTROVSKY (I.), FRAENKEL (Z.) and HUDIS (J.). — *Phys. Rev.*, 1961, **123**, 1452.
E. 1. ERICSON (T.). — *Nuovo Cimento*, 1961, **21**, 605.
F. 1. FRIEDLANDER (G.), FRIEDMAN (L.), GORDON (B. M.) et YAFFE (L.). — *Phys. Rev.*, 1963, **129**, 1809.
F. 2. FERMI (E.). — *Progress. Theor. Phys.*, 1950, **5**, 570.
F. 3. FRIEDLANDER (G.). — Communication personnelle.
F. 4. FOWLER (A. W.), GREENSTEIN (J. L.) and HOYLE (F.). — *Geophys. J. of the Roy. Astron. Soc.*, 1962, **6**, 148.
G. 1. GORDON (B. M.) and FRIEDMAN (L.). — *Phys. Rev.*, 1957, **108**, 1053.
G. 2. GRADSZTAJN (E.). — *J. Phys. Rad.*, 1960, **21**, 761.
G. 3. GEORGE (R.). — Thèse 3e cycle. Orsay, 1962.
G. 4. GRADSZTAJN (E.), EPHERRE (M.) et BERNAS (R.). — *Physics Letters*, 1963, **4**, 257.
G. 5. GOLDBERGER (M. L.). — *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 1269.
G. 6. GRADSZTAJN (E.). — Laboratoire Joliot-Curie. Rapport nº E 6414 (Orsay).
G. 7. GRADSZTAJN (E.). — *J. Phys.*, 1963, **24**, 829.
G. 8. GROSS (E. E.). — *Bull. Am. Phys. Soc.*, 1957, **2**, 14.
G. 9. GORITCHEV (P. A.), LOJKIN (O. V.), PERFILOV (N. A.) et YAKOVLEV (Y. P.). — *J. E. T. P.* (U. R. S. S.), 1961, **41**, 327.
G. 10. GOLD (T.). — *Astrophys. J.*, 1960, **132**, 274.
H. 1. HINTENBERGER (H.). — High Sensitivity Mass spectroscopy in Nuclear Physics. *Ann. Rev. Nucl. Sc.*, 1962, **12**, 435.
H. 2. HALLIDAY (J. S.), SWIFT (P.) and WOLSTENHOLME (W. A.). — *Advance in Mass Spectrometry*. Vol. III, Pergamon *(sous presse)*.
H. 3. HINTENBERGER (H.). — *Electromagnetically enriched isotopes and mass spectrometry*. Butterworths Scientific Publications. London, 1956.
H. 4. HUDIS (J.) and MILLER (J. M.). — *Phys. Rev.*, 1958, **112**, 1322.
H. 5. HONDA (M.) and LAL (D.). — *Nucl. Phys.*, 1964, **51**, 363.
H. 6. HERBIG (G. M.). — *Astrophys. J.*, 1964, **140**, 702.
H. 7. HABFAST (V. K.). — *Z. Naturforsch.*, 1960, **15***a*, 273.
I. 1. INGHRAM (M. G.) and CHUPKA (W. A.). — *Rev. Sc. Inst.*, 1953, **24**, 518.
I. 2. INGHRAM (M. G.). — *Ann. Rev. Nuc. Sc.*, 1954, **4**, 81.
J. 1. JAMES (A. N.) and PUGH (H. G.). — *Nucl. Phys.*, 1963, **42**, 441.
J. 2. JACKSON (J. D.). — *Can. J. Phys.*, 1956, **34**, 763 et 1957, **35**, 21.
J. 3. JDANOV (A. P.) et FEDOTOV (P. I.). — *J. E. T. P.*, 1963, **45**, 455 (U. R. S. S.) et Soviet Physics, *J. E. T. P.*, 1964, **18**, 313.
J. 4. JAMES (A. N.), FERGUSSON (A. T. G.) and JOHNSON (C. M. P.). — *Nucl. Phys.*, 1961, **25**, 282.
K. 1. KLAPISCH (R.). — Thèse en préparation (Orsay).
K. 2. KAMINSKY (M.). — *Advance in Mass Spectrometry*. Vol. III, Pergamon *(sous presse)*.
K. 3. KLAPISCH (R.) et BERNAS (R.). — Laboratoire Joliot-Curie. Rapport nº E 65-01.
K. 4. KOVALSKI (L.). — Thèse Orsay, 1963.
K. 5. KÖNIG (L. A.), MATTAUCH (J. H. E.) and WAPSTRA (A. H.). — *Nucl. Phys.*, 1962, **31**, 18.
K. 6. KATCOFF (S.). — *Phys. Rev.*, 1959, **114**, 905.
K. 7. KRANKOVSKY (D.) and MÜLLER (O.). — *Geochim. Cosmochim. Acta*, 1964, **28**, 1625.
L. 1. LANGMUIR (I.) and KINGDON (K. H.). — *Proc. Roy. Soc.*, 1925, **107**, 61.
L. 2. LEDUC (M.). — D. E. S. Orsay, 1964.
L. 3. LEFORT (M.), SIMONOFF (G.) et TARRAGO (X.). — *J. phys.*, 1963, **24**, 833.
L. 4. LEPORE (J. V.) and STUART (R. N.). — *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 1724.
L. 5. LOJKIN (O. V.), PERFILOV (N. A.), RIMSKI-KORSAKOV (A. A.) et FREMLIN (J.). — *J. E. T. P.*, 1960, **38**, 1388 (U. R. S. S.).
M. 1. MCHUGH (J. H.). — Thesis U. C. R. L. 10673, 1963.
M. 2. METROPOLIS (N.), BIVINS (R.), STORM (M.), TURKEVITCH (A.), MILLER (J. M.) and FRIEDLANDER (G.). — *Phys. Rev.*, 1958, **110**, 185.
M. 3. MORRISSON (G. C.), MUIRHEAD (H.) and ROSSER (W. G. V.). — *Phil. Mag.*, 1953, **44**, 1326.
M. 4. MEADOWS (J. W.). — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 744.
M. 6. METROPOLIS (N.), BIVINS (R.), STORM (M.), MILLER (J. M.), FRIEDLANDER (G.) and TURKEVITCH (A.). — *Phys. Rev.*, 1958, **110**, 204.
M. 7. MILLER (J. M.) et FRIEDLANDER (G.). — Séminaire au Laboratoire Joliot-Curie, 1963.

M. 8. MUIRHEAD (H.) and ROSSER (W. G. V.) . — *Phil. Mag.*, 1955, **h6**, 652.
M. 9. MILLER (J. M.) and HUDIS (J.). — *Ann. Rev. Nucl. Sc.*, 1959, **9**, 159.
M.10. MUNIR (B. A.). — *Phil. Mag.*, 1956, **1**, 355.
M.11. MITLER (H. E.). — *Phys. Rev.*, 1964, **136** B, 298.
N. 1. NGUYEN LONG DEN. — *Advance in Mass Spectrometry*. Vol. III, Pergamon *(sous presse)*.
N. 2. NGUYEN LONG DEN. — Thèse 3e cycle Orsay, 1961.
N. 3. NGUYEN LONG DEN. — Congrès International de Physique Nucléaire. C. N. R. S., Paris, 1964.
N. 4. NAKAGAWA (S.), TAMAI (E.), HUZITA (H.) and OKUDAIRA (K.). — *J. Phys. Soc. Jap.*, 1957, **12**, 747.
P. 1. PETRUSHKA (J. A.), THODE (H. G.) and TOMLINSON (R. H.). — *Can. J. Phys.*, 1955, **33**, 693.
P. 2. POFFE (N.). — Thèse Orsay, 1964.
P. 3. PERFILOV (N. A.), LOJKIN (O. V.) and SHAMOV (V. P.). — *Soviet Physics, Uspekhi*, 1960, **3**, 1.
R. 1. REYNOLDS (J. H.). — *Rev. Sc. Inst.*, 1956, **27**, 928.
R. 2. RAMEAU (F.). — Thèse 3e cycle Orsay, 1962.
R. 3. RICHARDSON. — *Emission of electricity from hot bodies*. Monographs of Phys. Longman, Green, London, 1921.
R. 4. REYNOLDS (F. L.). — *J. Chem. Phys.*, 1963, **39**, 1107.
R. 5. RUDSTAM (G.). — *Thesis Upsalla*, 1956.
R. 6. ROSENTAL (I. L.). — *Soviet Physics, J. E. T. P.*, 1955, **1**, 166.
R. 7. ROWLAND (F. S.) and WOLFGANG (R. L.). — *Phys. Rev.*, 1958, **110**, 175.
R. 8. RIDLEY (R. G.). — *J. Sci. Instr.*, 1961, **38**, 48.
S. 1. STROMINGER (D.), HOLLANDER (J. M.) and SEABORG (G. T.). — *Rev. Mod. Phys.*, 1958, **30**, 585.
S. 2. SERBER (R.). — *Phys. Rev.*, 1947, **72**, 1114.
S. 3. SCHWARZSCHILD (A.), POSKANZER (A. M.), EMERY (G. T.) and GOLDHABER (M.). — *Phys. Rev.*, 1964, **133** B, 1.
S. 4. SAMMAN (A.) et CÜER (P.). — *J. Phys. Rad.*, 1958, **19**, 13.
S. 5. SELOVE (W.) and TEEM (J. M.). — *Phys. Rev.*, 1958, **112**, 1658.
S. 6. SKEGGESTAD (O.) and SORENSEN (S. O.). — *Phys. Rev.*, 1959, **113**, 1115.
S. 7. SHIMA (M.). — *J. Geophys. Res.*, 1962, **67**, 4521.
S. 8. SHIMA (M.) and HONDA (M.). — *J. Geophys. Res.*, 1963, **68**, 2849.
S. 9. SILL (C. W.) and WILLIS (C. P.). — *Geochim. Cosmochim. Acta*, 1962, **26**, 1209.
S.10. SUESS (H.) and UREY (H. C.). — *Rev. Mod. Phys.*, 1956, **28**, 53.
T. 1. TCHOUPAKHIN (M. S.) et GRADSZTAJN (E.). — *Dokladi Akademi Naouk*, 1962, **142**, 337.
T. 2. TANNENWALD (P. E.). — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 508.
T. 3. TITTERTON (E. W.). — *Phil. Mag.*, 1951, **42**, 113.
U. 1. UREY (H. C.). — *Geochim. Cosmochim. Acta*, 1952, **2**, 269.
U. 2. UREY (H. C.). — *Physics and Chemistry of the Earth*, Pergamon, 1957.
V. 1. VOSHAGE (H.) und HINTENBERGER (H.). — *Z. Naturforsch.*, 1961, **16***a*, 1042.
V. 2. VALENTIN (L.), ALBOUY (G.), COHEN (J. P.) et GUSAKOW (M.). — *Physics Letters*, 1963, **7**, 163.
W. 1. WERNING (J.). — Thesis, U. C. R. L. 8455, 1958.
W. 2. WEIERSHAUSEN (W.). — *Advance in Mass Spectrometry*. Vol. I. Pergamon, London, 1959.
W. 3. WEISSKOPF (V.). — *Phys. Rev.*, 1937, **52**, 295.
W. 4. WOLFGANG (R.), BAKER (E. W.), CARETTO (A. A.), CUMMING (J. B.), FRIEDLANDER (G.) and HUDIS (J.). — *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 394.
W. 5. WAY (K.) *et al.* — National Research Council : Nuclear Data Sheets.
W. 6. WRIGHT (S. C.). — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 838.
W. 7. WALLERSTEIN (G.). — *Bull. Am. Phys. Soc.*, 1964, **9**, 711 et Communication privée à R. BERNAS.
W. 8. WEYMANN (R.) and MOORE (E.). — *Astrophys. J.*, 1963, **137**, 552.
Y. 1. YIOU (F.), KLAPISCH (R.), GRADSZTAJN (E.), EPHERRE (M.) et BERNAS (R.). — *Advance in mass spectrometry*. Vol. III. Pergamon *(sous presse)*.
Y. 2. YULE (H. P.) and TURKEVITCH (A.). — *Phys. Rev.*, 1960, **118**, 1591.
Y. 3. YUASA (T.) et POULET (M.). — *J. Phys.*, 1963, **24**, 1062.
Y. 4. YUASA (T.), BOWDEN (A. R.) and BOWMAN (M. R.). — Communication personnelle.
Z. 1. ZANDBERG (E. Ia.) et IONOV (N. I.). — *Ouspekhi Fizitcheskikh Naouk*, 1959, **67**, 581.

DEUXIÈME THÈSE

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

L'âge des météorites

Vu et approuvé :
Paris, le 30 mars 1965.
Le Doyen de la Faculté des Sciences,
Marc ZAMANSKY.

Vu et permis d'imprimer :
Le Recteur de l'Académie de Paris,
Jean ROCHE.

É. GRADSZTAJN

Imprimé avec les *Annales de Physique*. *Le Directeur de la Publication* : Georges Masson

Dépôt légal : 1965, 3e trimestre, n° d'ordre 4198, Masson et Cie, éditeurs, Paris
Printed in France. Imprimerie Barnéoud S. A., Laval, n° 5136. — 9-1965.

Thèse publiée par les *ANNALES DE PHYSIQUE*, 13e Série - **Tome** 10, 1965